ORSAY
Série A, N°
N° D'ordre :
61

Paris 1967

THÈSES

PRÉSENTÉES A

LA FACULTÉ DES SCIENCES D'ORSAY

POUR L'OBTENTION DU TITRE

DE DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ

(Mention Sciences)

par

M. Arnaldo Rodolfo MARMAI

Première These

CONTRIBUTION A L'ETUDE MICROGRAPHIQUE DE L'ELIMINATION DES LACUNES THERMIQUES AU COURS DE DIVERS TRAITEMENTS THERMIQUES DANS LE CAS DE L'ALUMINIUM ET DE L'ALLIAGE ALUMINIUM - CUIVRE A 4 % DE CUIVRE

Deuxième These

Propositions données par la Faculté

Soutenues le 2 Décembre 1967 devant la commission d'examen

Composée de:

Président : P. LACOMBE

Examinateurs : J. TALBOT
J. MONTUELLE

Invité : G. WYON

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41549003_0045

T H E S E S

présentées

A LA FACULTE DES SCIENCES D'ORSAY

pour obtenir le titre de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE

(Mention Sciences)

par

M. Arnaldo MARMAI

Première Thèse

CONTRIBUTION A L'ETUDE MICROGRAPHIQUE DE L'ELIMINATION DES LACUNES THERMIQUES AU COURS DE DIVERS TRAITEMENTS THERMIQUES DANS LE CAS DE L'ALUMINIUM ET DE L'ALLIAGE ALUMINIUM-CUIVRE A 4% DE CUIVRE

Deuxième Thèse

Propositions données par la Faculté

Soutenues le devant la commission d'examen

MM. Président : P. LACOMBE

Examinateurs : J. TALBOT
J. MONTUELLE

Invité : G. WYON

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

A MON EPOUSE

ET

A MON FILS

REMERCIEMENTS

Cette thèse a été préparée sous la direction de Monsieur le Professeur P. LACOMBE, au Centre de Recherches Métallurgiques de l'Ecole des Mines de Paris.

Je prie Monsieur P. LACOMBE, Professeur à la Faculté des Sciences d'Orsay et à l'Ecole des Mines de Paris, de bien vouloir trouver ici l'expression de ma profonde gratitude pour l'intérêt qu'il a toujours porté à mon travail et pour l'intérêt qu'il a porté à mes recherches.

Que Monsieur Gérard WYON, Chef de Travaux à l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, accepte l'expression de ma très sincère gratitude pour la direction attentive qu'il n'a cessé d'accorder à mon travail, pour ses précieux conseils, et surtout pour l'aide inappréciable qu'il m'a apportée en m'aidant à rédiger dans ses moindres détails cette thèse, permettant ainsi de mettre davantage en lumière les résultats obtenus.

Je suis reconnaissant à Messieurs J. TALBOT, J. MONTUELLE, d'avoir bien voulu accepter d'être membre de notre jury de thèse.

Je tiens aussi à remercier mon épouse qui m'a aidé en la réalisation des expériences et à plusieurs reprises, pour résoudre des problèmes de technique expérimentale.

J'adresse mes remerciements à Monsieur M. LEROY qui m'a permis d'utiliser son platine chauffante pour la réalisation de plusieurs expériences.

Je remercie également tous mes camarades du Centre de Recherches Métallurgiques, et en particulier Monsieur G. FRADE pour sa collaboration dans les études au microscope électronique.

Je tiens aussi à remercier le personnel technique du laboratoire,

et en particulier Monsieur BARTHET qui m'a apporté une aide précieuse.

Je remercie le CONSEJO NACIONAL DE INVESTIGACIONES CIENTIFICAS Y TECNICAS DE LA République Argentine de m'avoir accordé une bourse qui m'a permis de mener à bien ces recherches.

Je remercie enfin l'A.S.T.E.F. qui a bien voulu accorder à mon épouse une bourse permettant de résoudre les problèmes financiers posés par la prolongation de mon séjour en France.

SOMMAIRE

Pages

INTRODUCTION..... 1

CHAPITRE I - METHODES EXPERIMENTALES..... 5

I - 1 - Préparation de gros cristaux dans le cas de l'alliage Al-Cu à 4% de cuivre..... 5

I - 1 - 1 - Généralités..... 5

I - 1 - 2 - Méthodes expérimentales..... 6

I - 1 - 2 - 1 - Préparation des bandes laminées..... 6

I - 1 - 2 - 2 - Traitements mécanique et thermique des éprouvettes..... 7

I - 1 - 2 - 2 - 1 - Etat initial avant écrouissage critique.... 7

I - 1 - 2 - 2 - 2 - Les traitements thermiques réalisés..... 7

I - 1 - 3 - Résultats obtenus..... 9

a) Dans le cas de l'alliage Al-Cu à 3,98% de cuivre..... 9

b) Dans le cas de l'alliage Al-Cu à 4,15% de cuivre..... 10

I - 1 - 4 - Interprétation des résultats..... 11

I - 1 - 5 - Conclusions..... 11

I - 2 - Polissage électrolytique à basse température..... 13

I - 2 - 1 - Buts poursuivis..... 13

I - 2 - 2 - Préparation préliminaire des lames minces..... 14

I - 2 - 3 - Technique de polissage..... 15

I - 2 - 3 - 1 - Description de l'appareillage..... 15

I - 2 - 3 - 2 - Conditions expérimentales..... 16

I - 2 - 3 - 3 - Résultats obtenus..... 17

- Cas des échantillons massifs..... 17

- Cas de la préparation des lames minces..... 18

Pages

I - 2 - 4 - Conclusions..... 19

I - 3 - Oxydation anodique..... 21

I - 3 - 1 - Généralités..... 21

I - 3 - 2 - Technique expérimentale..... 22

I - 3 - 2 - 1 - Oxydation anodique de l'aluminium..... 22

I - 3 - 2 - 2 - Oxydation anodique de l'alliage aluminium-cuivre à 4% de cuivre..... 24

I - 3 - 3 - Résultats obtenus..... 25

I - 3 - 3 - 1 - Cas de l'aluminium..... 25

- Influence de la tension..... 25

I - 3 - 3 - 2 - Cas des alliages aluminium-cuivre..... 26

I - 3 - 4 - Conclusions..... 27

C H A P I T R E II - ETUDE DE LA FORMATION DES "FIGURES THERMIQUES" AU COURS DE TRAITEMENTS DE TREMPE ETAGEE - Cas de l'aluminium..... 28

II - 1 - Métaux utilisés..... 29

II - 2 - Préparation des échantillons..... 29

II - 3 - Traitements thermiques réalisés..... 30

- Les deux vitesses de chauffage..... 31

- Les diverses vitesses de refroidissement..... 31

- Réalisation des essais de trempe étagée..... 32

- Remarques importantes..... 32

a) Cas des trempes dans les bains de sel ou d'étain... 32

b)Cas des trempes d'échantillons semi-minces..... 32

II - 4 - Résultats obtenus..... 33

- Les traitements avec $\theta_M > 525°C$..... 33

- Les traitements avec $\theta_M < 525°C$..... 34

II - 4 - 1 - Cas des traitements avec $\theta_M > 525°C$..... 34

Pages

II - 4 - 1 - 1 - Rôle du nombre de lacunes disponibles pour former des figures thermiques entre θ_M et θ_m.... 35
a) Cas où la température maximale est élevée.... 35
Remarque importante..... 37
b) Cas où la température maximale est basse..... 37
II - 4 - 1 - 2 - Influence de la vitesse de refroidissement..... 37
a) La vitesse de refroidissement est faible..... 38
b) La vitesse de refroidissement est assez élevée..... 38
c) La vitesse de refroidissement est élevée..... 38
d) La vitesse de refroidissement est très élevée..... 39
II - 4 - 1 - 3 - Influence de l'épaisseur de l'échantillon..... 39
II - 4 - 1 - 4 - Influénce des impuretés : cas du fer..... 41
a) Cas de l'aluminium A-20..... 41
b) Cas de l'aluminium A-300..... 41
II - 4 - 1 - 5 - Influence des traitements thermiques répétés.... 42
II - 4 - 1 - 6 - Influence de la nature et de l'épaisseur de la couche d'oxyde sur la formation des figures thermiques..... 43
a) Oxyde d'origine thermique..... 43
- Pour $400 < \theta_M < 500°C$..... 43
- Pour $550 < \theta_M < 640°C$..... 44
b) Oxyde d'origine anodique..... 44
- A base d'acide sulfurique..... 44
- A base de tartrate d'amminium..... 44
II - 4 - 1 - 7 - Influence des durées de séjour aux températures θ_M et θ_m sur la formation des figures thermiques 45
a) Influence de la durée à la température θ_M.... 45
b) Influence de la durée de séjour à la température θ_m..... 45

Pages

II - 5 - Discussion des résultats..... 47
II - 5 - 1 - Hypothèses sur l'origine des "figures thermiques".. 47
II - 5 - 2 - Rôle du nombre de lacunes disponibles par cm^2 de surface d'échantillon pour former des figures thermiques..... 47
II - 5 - 3 - Rôle des tensions introduites par la trempe sur l'apparition des figures thermiques..... 48
a) Influence de $\Delta\theta$..... 48
- Cas des vitesses de refroidissement faibles... 48
- Cas des vitesses de refroidissement élevées... 49
b) Influence de la vitesse de refroidissement..... 49
II - 5 - 4 - Rôle de l'épaisseur de l'échantillon..... 49
II - 5 - 5 - Rôle des impuretés : effet du fer..... 50

CHAPITRE III- FORMATION DES FIGURES THERMIQUES PAR TREMPE ETAGEE A LA SURFACE DES ALLIAGES Al-Cu à 4%..... 51

III - 1 - Les alliages utilisés..... 51
III - 1 - 1 - Préparation des éprouvettes..... 51
III - 1 - 2 - Caractéristiques particulières des traitements de trempe étagée..... 52

III - 2 - Résultats obtenus..... 53
- Pour les traitements avec $\theta_M > 525°C$..... 53
- Pour les traitements à des températures θ_M comprises entre450 et 525°C..... 53
III - 2 - 1 - Rôle du nombre de lacunes disponibles entre les températures θ_M et θ_m sur la formation des figures thermiques..... 54
a) Cas où la température maximale est > 525°C..... 55
b) Cas où la température maximale est inférieure à 525°C..... 56

Pages

III - 2 - 2 - Influence de la vitesse de refroidissement..... 56

a) La vitesse de refroidissement est faible (2 à 5°C/sec)..... 56

b) La vitesse de refroidissement est assez élevée (environ 200°C/sec) par trempe à l'huile..... 57

c) La vitesse de refroidissement est élevée..... 57

III - 2 - 3 - Influence de l'épaisseur de l'échantillon..... 57

III - 2 - 4 - Influence de la structure et de l'épaisseur de la couche d'oxyde..... 58

a) Oxyde d'origine thermique..... 58

b) Oxyde anodique..... 58

III - 2 - 5 - Influence des durées de séjour aux températures θ_M et θ_m..... 59

a) Influence de la durée de maintien à la température θ_M..... 59

b) Influence de la durée de séjour à la température θ_m pour une même valeur de $\theta_M > 525°C$..... 59

CHAPITRE IV- ETUDE DE LA FORMATION DES FIGURES THERMIQUES AU COURS DE RECHAUFFAGES APRES TREMPE - Cas de l'aluminium..... 61

IV - 1 - Métaux utilisés..... 61

IV - 2 - Traitements thermiques réalisés..... 61

IV - 3 - Résultats obtenus..... 63

a) Les traitements avec $\theta_M > 525°C$..... 63

b) Les traitements avec $\theta_M < 525°C$..... 63

IV - 3 - 1 - Influence de la quantité de lacunes en excès à θ_R.. 63

IV - 3 - 2 - Influence de la vitesse de réchauffage..... 64

IV - 3 - 2 - 1 - Cas de traitements à vitesse de réchauffage de l'ordre de 300°C/minute..... 64

Pages

IV - 3 - 2 - 1 - 1 - Pour $\theta_M > 525°C$..... 64
IV - 3 - 3 - 1 - 2 - Pour $\theta_M < 525°C$..... 66
IV - 3 - 2 - 2 - Cas des traitements avec une vitesse de réchauffage de 15°C/minute..... 66
IV - 3 - 3 - Influence de la durée de séjour à θ_R..... 68
IV - 3 - 3 - 1 - Pour des vitesses de réchauffage $\geqslant$ 300°C/minute 68
IV - 3 - 3 - 2 - Pour des vitesses de réchauffage de l'ordre de 15°C par minute..... 68
IV - 3 - 4 - Influence de la durée du séjour à 20°C avant le réchauffage à θ_R..... 68
IV - 3 - 5 - Influence de la nature de la couche d'oxyde..... 69
- Cas particulier de l'oxyde anodique..... 69
a) A base d'acide sulfurique..... 69
b) A base de tartrate d'ammonium..... 69
IV - 3 - 6 - Influence de l'épaisseur de l'échantillon..... 70

CHAPITRE V - FORMATION DES FIGURES THERMIQUES AU COURS DE RECHAUFFAGE APRES TREMPE A LA SURFACE DES ALLIAGES Al-Cu A 4%..... 71

V - 1 - Alliage utilisé..... 71

V - 2 - Traitements thermiques réalisés..... 71

V - 3 - Résultats obtenus..... 72
V - 3 - 1 - Influence de la quantité de lacunes en excès à θ_R.. 72
V - 3 - 2 - Influence de la vitesse de réchauffage..... 72
V - 3 - 2 - 1 - 1 - Pour θ_M compris entre 540°C et 570°C et pour $\theta_R \geqslant 400°C$..... 73
V - 3 - 2 - 1 - 2 - Pour θ_M compris entre 540°C et 570°C et pour $\theta_R \leqslant 300°C$..... 73
V - 3 - 2 - 2 - Cas des traitements avec vitesse de réchauffage de l'ordre de 15°C/minute..... 75

Pages

V - 3 - 3 - Influence de la durée du séjour à θ_R..... 75
V - 3 - 3 - 1 - Pour des vitesses de réchauffage $\geqslant$ 300°C par minute..... 75
V - 3 - 3 - 2 - Pour une vitesse de réchauffage de l'ordre de 15°C par minute (pour θ_M = 540°C)..... 75
V - 3 - 4 - Influence de la durée du séjour à 20°C avant le réchauffage à θ_R..... 75
V - 3 - 5 - Influence de la nature de la couche d'oxyde..... 75
a) Cas de θ_R = 400 à 450°C..... 75
b) Cas de θ_R = 200 à 300°C..... 75

CHAPITRE VI - CONCLUSIONS..... 79

VI - 1 - Traitement de trempe étagée..... 79
VI - 1 - 1 - Cas de l'aluminium raffiné..... 79
VI - 1 - 1 - 1 - Le nombre de figures thermiques..... 79
VI - 1 - 1 - 2 - Le volume des figures thermiques..... 80
VI - 1 - 1 - 3 - La répartition des figures..... 80
VI - 1 - 1 - 4 - La présence de l'impureté fer..... 80
VI - 1 - 1 - 5 - La structure de la couche d'oxyde..... 81
VI - 1 - 1 - 6 - L'épaisseur de l'échantillon..... 81
VI - 1 - 2 - Cas de l'alliage A-U4..... 81
VI - 1 - 2 - 1 - Le nombre de figures thermiques..... 81
VI - 1 - 2 - 2 - Le volume des figures thermiques..... 82
VI - 1 - 2 - 3 - La répartition des figures thermiques..... 83
VI - 1 - 2 - 4 - La structure de la couche d'oxyde..... 83
VI - 1 - 2 - 5 - L'épaisseur de l'échantillon..... 83

VI - 2 - Traitements de trempe suivis de réchauffage..... 83
VI - 2 - 1 - Cas de l'aluminium..... 83
VI - 2 - 1 - 1 - Le nombre de figures thermiques..... 84
VI - 2 - 1 - 2 - Le volume des figures thermiques..... 84
VI - 2 - 1 - 3 - La répartition des figures..... 85

Pages

VI - 2 - 1 - 4 - La durée du séjour à température ambiante avant le réchauffage..... 85
VI - 2 - 1 - 5 - La structure de la couche d'oxyde..... 85
VI - 2 - 1 - 6 - L'épaisseur de l'échantillon..... 86
VI - 2 - 2 - Cas de l'alliage A-U4..... 86
VI - 2 - 2 - 1 - Le nombre de figures thermiques..... 86
VI - 2 - 2 - 2 - Le volume des figures thermiques..... 87
VI - 2 - 2 - 3 - La répartition des figures..... 87
VI - 2 - 2 - 4 - La durée du séjour à la température ambiante avant le réchauffage..... 87
VI - 2 - 2 - 5 - La structure de la couche d'oxyde..... 88
VI - 2 - 2 - 6 - L'épaisseur de l'échantillon..... 88

VI - 3 - Discussion..... 88
VI - 3 - 1 - Cas des trempes étagées..... 89
VI - 3 - 2 - Cas des réchauffages après trempe..... 89

INTRODUCTION

A la suite de travaux antérieurs réalisés au Centre de Recherches Métallurgiques, il est apparu que la formation des "figures thermiques" sur l'aluminium pouvait fournir des renseignements très importants sur la mobilité et l'élimination des lacunes dans l'aluminium (1, 2, 3, 4).

Il est bien connu que les lacunes jouent un rôle prépondérant en ce qui concerne les phénomènes de précipitation dans les alliages. Nous avons pensé que l'étude des "figures thermiques" pourrait permettre d'expliquer certains aspects de la cinétique du vieillissement dans le cas des alliages à durcissement structural.

Le vieillissement est en effet gouverné essentiellement par les imperfections de structure à l'échelle atomique. Parmi ces imperfections, les lacunes créées aux hautes températures et subsistant après la trempe jouent un rôle important : on a suggéré notamment que les lacunes d'origine thermique se trouveraient étroitement associées à certains atomes de soluté lors des premiers stades du vieillissement, par exemple dans les alliages aluminium-cuivre (5) ou aluminium-zinc (6) (7).

Nos travaux ont donc d'abord été orientés vers l'étude des facteurs influençant la mobilisation et l'élimination des lacunes d'origine thermique dans l'aluminium pur, au cours de son refroidissement depuis des températures élevées, ou durant un réchauffage après trempe.

Parmi les facteurs qui influent sur la cinétique de l'élimination des lacunes, nous avons retenu :

- la pureté du métal,
- l'état structural du matériau,
- l'épaisseur des échantillons,
- les températures de recuit et celles des trempes (banales ou étagées),

- la vitesse de refroidissement durant la trempe,
- les tensions introduites par la trempe.

Le premier problème auquel nous nous sommes plus spécialement attaqué est l'étude des différents facteurs susceptibles d'intervenir dans la formation des figures thermiques à la surface des cristaux d'aluminium. On a en effet attribué (8) le développement de ces figures au rassemblement des lacunes en sursaturation, lesquelles se trouvent piégées à l'interface métal-oxyde thermique.

Parmi les différents facteurs considérés par divers auteurs, il convient de mentionner la structure et l'épaisseur de la couche d'alumine superficielle. Il est en effet impossible de voir se développer des figures thermiques si l'oxyde est formé par oxydation à l'air à une température inférieure à 500°C environ (1-3-9). C'est pourquoi nous avons réalisé parfois une oxydation anodique préliminaire : cette façon de procéder a seule permis de constater la présence de figures thermiques après des chauffages compris entre 100°C et 400°C.

Nous nous sommes par ailleurs plus spécialement attachés à l'étude du rôle de la température et de la vitesse de réchauffage après trempe, ainsi que celui de la durée de réchauffage parce que ces facteurs sont susceptibles d'apporter des éclaircissements sur la cinétique d'élimination des lacunes, non seulement dans l'aluminium pur mais aussi dans un alliage binaire aluminium-cuivre susceptible de durcissement structural. L'utilisation d'une platine chauffante nous a notamment permis d'observer au microscope optique, au cours de réchauffages après trempe la cinétique de développement des microfigures thermiques liée à la cinétique d'élimination des lacunes.

Parallèlement, nous avons étudié par microscopie électronique

sur lames minces l'influence de divers traitements thermiques sur la structure de l'aluminium et sur celle de l'alliage aluminium-cuivre, après des trempes à -60°C.

Les résultats obtenus dans le cas de l'alliage aluminium-cuivre à 4%cuivre ont été rapprochés de ceux obtenus avec l'aluminium pur. En effet, dans un alliage à durcissement structural, la formation des précipités est liée aux déplacements et à l'élimination des lacunes. C'est pour cela qu'il nous a paru opportun de donner une importance particulière au problème du développement des figures thermiques, lié à l'élimination des lacunes.

Pour mener à bien cette étude, il a fallu tout d'abord définir le mode de préparation des échantillons à gros grain nécessaires. Cette obtention de gros cristaux d'alliages aluminium-cuivre, ainsi que la mise au point des procédés d'oxydation anodique et de polissage électrolytique à basse température doivent être considérées comme étant des techniques dont le contrôle est nécessaire pour que la formation des figures thermiques soit reproductible et significative.

Ce travail s'inscrit dans le cadre des recherches entreprises au Centre de Recherches Métallurgiques sur les alliages à durcissement structural du type aluminium-cuivre, et nous verrons successivement :

Chapitre I - Mise au point des méthodes expérimentales

a) Obtention de gros cristaux dans le cas de l'alliage aluminium-cuivre à 4% du cuivre

b) Polissage électrolytique à basse température de l'aluminium et de l'alliage Al-Cu à 4%

c) Oxydation anodique de l'aluminium et de l'alliage Al-Cu à 4

Chapitre II - Etude de la formation des figures thermiques au cours de traitements de trempe étagée - Cas de l'aluminium.

Chapitre III- Formation des figures thermiques par trempe étagée à la surface des alliages Al-Cu à 4%.

Chapitre IV - Etude de la formation des figures thermiques au cours de réchauffage après trempe - Cas de l'aluminium.

Chapitre V - Formation des figures thermiques au cours de réchauffage après trempe à la surface des alliages Al-Cu à 4%.

Chapitre VI - Conclusions générales.

CHAPITRE I

METHODES EXPERIMENTALES

Dans ce chapitre, nous décrirons successivement les diverses techniques expérimentales employées.

I - 1 - PREPARATION DE GROS CRISTAUX DANS LE CAS DE L'ALLIAGE Al-Cu à 4% DE CUIVRE

I - 1 - 1 - Généralités

On connaît le grand intérêt que présentent les monocristaux ou les échantillons à grains de métaux purs dans la recherche métallurgique, a fortiori dans le cas des alliages à traitement thermique.

Dans notre cas, pour mieux comprendre le phénomène de précipitation sur les joints de grain ou les sous-joints et en correspondance des bandes de glissement, d'une part, et l'influence que l'état de polygonisation des cristaux peuvent avoir sur le durcissement structural des alliages aluminium-cuivre à 4% de cuivre, nous a obligé à chercher de travailler sous gros cristaux capables de permettre l'étude simultanée de ces divers facteurs.

En conséquence, nous avons considéré comme première étape nécessaire de notre étude, la préparation des gros cristaux d'aluminium-cuivre à 4% de cuivre.

Pour l'obtention de ces cristaux, nous avons utilisé la technique classique de l'écrouissage critique appliquée à des échantillons recristallisés à grain fin.

I - 1 - 2 - Méthodes expérimentales

Des recherches antérieures (10) ont déjà montré, dans le cas de divers alliages aluminium-cuivre, l'influence d'un certain nombre de facteurs sur la possibilité d'obtention de très gros cristaux, tels que le mode de déformation, la température et la durée des traitements de recristallisation. Nos résultats mettent également en évidence, pour des éprouvettes ayant environ 2 mm d'épaisseur, l'influence primordiale du programme des traitements thermiques.

I - 1 - 2 - 1 - Préparation des bandes laminées

Les alliages aluminium-cuivre à 4% de cuivre utilisés se présentaient sous forme de largets de 70 mm de large et 10.5 mm d'épaisseur. La composition de ces alliages est donnée dans le tableau I. Après un décapage initial (dans un bain renfermant 1% HF, 2,5% HNO_3, 1,5% HCl, 95% H_2O), un polissage mécanique sur des papiers abrasifs et un décapage final, les échantillons furent recuits à 526°C $\pm$ 2°C pendant environ 2 heures.

Après le refroidissement des échantillons à l'air, on a réalisé le laminage (par passes de 0.2 mm) en deux étapes successives : de 10 mm jusqu'à 4.60 mm et de 4.60 mm jusqu'à 1.98 mm. Entre les 2 laminages un recuit de 1 heure à 526°C a été effectué et, pour certains échantillons destinés à la préparation ultérieure de lames minces, le laminage final a été mené jusqu'à une épaisseur de 0.1 mm.

Tableau I - Composition des alliages aluminium-cuivre

Alliages	Teneur en éléments (% en poids)						
	Cu	Fe	Si	Mg	Ti	V	Zn
A-U4	4.15	0.01	0.004				
A-U4	3.98	0.0025	<0.0010	0.0006	0.0030	0.0010	0.0010

I - 1 - 2 - 2 - Traitements mécanique et thermique des éprouvettes

I - 1 - 2 - 2 - 1 - Etat initial avant écrouissage critique

Les bandes laminées écrouies ont été découpées transversalement en petites plaquettes de 20 à 25 mm de large et 40 à 45 mm de long ou estampées pour obtenir des microéprouvettes ayant 10 mm de longueur utile et 2 mm de large.

Les microéprouvettes comme les plaquettes ont été ensuite recristallisées à grain fin par un recuit de 30 mn à 525°C suivi d'un refroidissement à l'air calma. C'est sur cet état initial que les essais d'écrouissage critique ont été effectués soit par laminage (dans le cas des plaquet. soit par traction à l'aide d'une micromachine de type Chevenard (cas de microéprouvettes) mais toujours à la température ambiante.

I - 1 - 2 - 2 - 2 - Les traitements thermiques réalisés

Afin de pouvoir établir le mode de recuit le plus favorable au développement de gros cristaux, nous avons réalisé pour chaque valeur de

l'écrouissage, des traitements thermiques variés. Le refroidissement final a toujours été effectué à l'air ($V_R \simeq 5°C.sec^{-1}$).

La figure 1 indique les différents types de traitements thermiques réalisés et le tableau II rassemble les caractéristiques principales des divers traitements.

Tableau II - Caractéristiques des traitements thermiques

Type de traitement Cf.Fig.1	Températures et durée des traitements				Vitesses de montée en températures		
	θ'_M	Séjour à θ'_M	θ_M	Séjour à θ'_M	de 20°C à θ'_M	de 20°C à θ_M	de θ'_M à θ_M
A			490°C à 550°C	1 h à 24 h		0,5°C/mn à 300°C/mn	
B	200°C à 470°C	1 h à 24 h	550°C à 570°C	1 h à 24 h	0,5°C/Mn à 300°C/mn		0,5°C/mn

1 - 1 - 3 - Résultats obtenus

Les études de recristallisation des deux alliages aluminium-cuivre à 4% cuivre ont permis de mettre en évidence les points suivants :

a) Dans le cas de l'alliage Al-Cu à 3,98% de cuivre lorsque le traitement thermique comporte un palier de 1 heure à 470°C nous avons constaté les faits suivants :

- Quand le recuit, après la déformation critique, a été effectué en portant brusquement les éprouvettes à des températures supérieures à celle de mise en solution complète du cuivre, le grossissement des cristaux demeure très limité, quelle que soit la valeur de l'écrouissage. Si dans ce cas l'on constate parfois une certaine croissance des grains, il s'agit d'une croissance "discontinue" liée vraisemblablement à l'existence de la phase Al_2Cu dispersée existant avant la déformation critique.

- Le traitement avec "palier" de température a seul permis le grossissement des cristaux, mais la vitesse de montée en température jusqu'au palier a un effet important. En général, une montée rapide en température, et un séjour prolongé à la température du palier sont favorables au développement de gros cristaux. On constate qu'un palier à 470°C durant 1 heure conduit à une dimension moyenne d'environ 1 cm^2 pour les cristaux, un séjour de plus longue durée à 470°C a permis de faire croître les grains jusqu'à une taille de 2 cm^2 environ (figure 3).

Nous avons établi une courbe de grosseur des grains (figure 2) en fonction du taux de déformation par laminage ou traction à froid. Les résultats obtenus avec ce mode de déformation et

---

(10) Une déformation de 10% suivie d'un recuit à 570°C pendant 15 heures avant l'écrouissage critique n'a pas amené de modification sensible de la taille finale des cristaux.

pour un traitement du type "B" ont permis de situer la valeur de l'écrouissage critique entre 2.0 et 2.5%. Pour les éprouvettes écrouies par traction, le taux de déformation critique est compris entre 4.4 et 4.6%.

b) Dans le cas de l'alliage Al-Cu à 4,15% de cuivre, nous avons éprouvé des difficultés pour établir la valeur optimale de la déformation critique : nous supposons que la présence du fer peut être à l'origine de ces difficultés. En effet, la mise en solution totale du fer contenu dans cet alliage est seulement possible par recuit si la température est supérieure à 533°C environ.

I - 1 - 4 - Interprétation des résultats

Les résultats ci-dessus montrent que l'obtention de gros cristaux d'aluminium-cuivre a pu être menée à bien par la méthode de l'écrouissage critique à condition d'effectuer un traitement thermique comportant un palier de température à 470°C.

Cette température est très peu inférieure à la limite de solubilité du cuivre dans l'alliage utilisé (laquelle est voisine de 500°C).

On peut donc penser que ce palier permet de précipiter une petite quantité de phase Al_2Cu dans la solution solide.

La présence de cette phase étrangère s'est révélée comme un moyen efficace pour "amorcer" la croissance discontinue et la montée ultérieure de la température au-dessus de la courbe limite de solubilité a permis le développement des cristaux dans une matrice sans précipité.

Il convient de remarquer que les résultats obtenus avec des paliers à différentes températures (200, 300, 400 et 470°C) ont montré que la température de 470°C est la plus favorable pour l'obtention de gros cristaux, mais une température supérieure a conduit à des cristallisations plus fines. Ce fait montre bien que la présence d'une faible quantité de précipité Al_2Cu est nécessaire pour amorcer la formation des gros cristaux.

Enfin, nous avons pu constater que la durée du palier joue un rôle beaucoup moins important que celui de la température de ce palier. Cette remarque indique bien que la précipitation de la phase Al_2Cu se développe rapidement à la température de 470°C et qu'un séjour plus long produit seulement la globulisation d'Al_2Cu, laquelle ne perturbe pas la recristallisation.

I - 1 - 5 - Conclusions

La technique classique de l'écrouissage critique par laminage ou

traction appliquée à des échantillons polycristallins d'alliage du type A-U4, provoque la croissance des cristaux à condition que cet écrouissage soit suivi d'un traitement thermique comportant initialement un palier de température à 470°C, température très peu inférieure à la limite de solubilité du cuivre dans l'alliage utilisé.

Les échantillons utilisés lors de nos études sur les figures thermiques ont donc subi le traitement suivant :

- Traitement thermique initial défini au § I-1-2-2-1
- Ecrouissage critique de 2.0 à 2.5% par laminage ou 4.4 à 4.6% par traction
- Recuit à 470°C pendant 24 heures suivi d'une montée de la température jusqu'à 570°C et séjour à cette température pendant environ 75 heures
- Refroidissement au four à la vitesse de 150°C/heure, afin de limiter au maximum toute sursaturation en lacunes thermiques.

I - 2 - POLISSAGE ELECTROLYTIQUE A BASSE TEMPERATURE

I - 2 - 1 - Buts poursuivis

Dans le cas des alliages polyphasés, l'obtention par polissage électrolytique de lames minces satisfaisantes pour un examen par transmission au microscope électronique est rendu difficile par une dissolution préférentielle de certains constituants, particulièrement aux joints de grains.

En général, le temps d'électrolyse nécessaire pour l'obtention de lames suffisamment minces est assez long, ce qui oblige à partir d'échantillons très peu épais fortement laminés. La plupart des méthodes de polissage utilisées ne conviennent en effet qu'à des spécimens de 0.02 à 0.05 mm d'épaisseur et de faible surface (11, 12, 13). Ces restrictions peuvent avoir une grande importance dans le cas de certaines études où l'on souhaite observer le comportement d'un matériau dans l'état quasi-massif.

Il convient d'autre part, de rappeler que dans certains cas (14), le maintien du métal ou de l'alliage, pendant le polissage à une température supérieure à -60°C peut entraîner des modifications de la structure initiale obtenue par trempe à basse température.

Enfin, certains réactifs de polissage (15, 16) produisent une couche d'oxyde à la surface des échantillons (ce qui perturbe les observations ultérieures) et, dans le cas particulier des alliages à durcissement structural, la précipitation intercristalline ou intergranulaire peut être l'objet d'une attaque préférentielle nuisible.

Le but de la méthode proposée est de réduire considérablement ces inconvénients.

La méthode décrite de polissage électrolytique à basse température permet notamment d'obtenir à partir d'échantillons de grandes dimensions, soit des surfaces micrographiques très réfléchissantes exemptes de piqûres,

soit un grand nombre de lames minces destinées à être examinées au microscope électronique.

Les conditions de préparation préliminaire et de polissage de tels échantillons ont été déterminées pour l'aluminium pur et pour l'alliage aluminium-cuivre à 4% de cuivre.

Nous insisterons plus particulièrement sur le cas plus délicat de la préparation des lames minces.

I - 2 - 2 - Préparation préliminaire des lames minces

Pour permettre aux échantillons de rester rigides jusqu'au stade final de lames minces, nous avons employé la technique de préparation préliminaire suivante :

a) le bord de l'échantillon (de 0.2 mm d'épaisseur, 20 mm de largeur et 50 mm de longueur) a été verni (figure 4), avec une solution contenant 25 gr de chloro-acétate de polyvynil pour 100 cm^3 d'acétone.

b) l'échantillon verni subit alors un amincissement électrolytique qui permet de réduire son épaisseur initiale dans la zone centrale D (figure 4), jusqu'à environ 0.04 mm.

Pour réaliser ce premier polissage, nous avons utilisé respectivement pour l'aluminium pur et l'alliage A-U4, les électrolytes perchlorique-éthanol (12) et acéto-perchlorique de JACQUET (17), maintenus à une température comprise entre 3 et 10°C. A titre indicatif, le temps nécessaire pour réaliser ce polissage, dans le cas de l'aluminium, a été de 45 minutes environ.

La lame semi-mince obtenue est ainsi protégée par un cadre support de 0,2 mm d'épaisseur parfaitement solidaire qui présente la même composition et le même état structural que la lame elle-même.

On peut dire que les buts essentiels de ce cadre sont les suivants :

1) éviter la déformation de l'échantillon pendant les traitements thermiques ultérieurs réalisés sur la lame semi-mince et durant le polissage final à basse température ;

2) permettre, grâce à une fenêtre de grande surface, l'obtention simultanée d'environ 20 à 30 coupes minces à partir d'un état quasi-massif ;

3) éviter l'emploi du vernis durant le polissage final à basse température ;

4) permettre l'utilisation d'un même échantillon semi-mince pour réaliser des traitements thermiques successifs (par exemple : trempe + maturation + réversion) à condition d'appliquer le vernis suivant le schéma à plusieurs fenêtres distinctes indiqué sur la figure 5.

On peut dire finalement que cette préparation préliminaire des lames minces par la méthode de la "grande fenêtre", donne au polissage à basse température des possibilités très intéressantes utilisables dans d'autres cas de préparation de coupes minces.

I - 2 - 3 - Technique de polissage

I - 2 - 3 - 1 - Description de l'appareillage

La cellule de polissage électrolytique à basse température (figure 6) est constituée essentiellement par un bécher un acier inoxydable contenant l'électrolyte et refroidi par un bain d'acétone sursaturé en neige carbonique.

Le rebord du récipient contenant le mélange réfrigérant est suffisamment haut pour que le bécher où s'effectue l'électrolyse soit surmonté

d'une atmosphère d'anhydride carbonique : on évite ainsi toute condensation de vapeur d'eau sur le bécher, dans l'électrolyte et sur le porte-échantillon.

L'anode est constituée par l'échantillon à polir, lequel est maintenu par une pince en aluminium non immergée dans l'électrolyte.

La cathode est formée par le bécher en acier inoxydable contenant l'électrolyte. L'agitation de l'électrolyte est assurée par un mouvement de rotation de l'anode (25 tours par minute).

L'électrolyte, celui proposé par DIMITROV et ALBERT (18) : c'est un mélange de 4 parties d'alcool méthylique R.P. pour une partie d'acide nitrique concentré (d = 1,33).

I - 2 - 3 - 2 - Conditions expérimentales

Les tensions que nous avons appliquées pour l'aluminium pur et l'alliage aluminium-cuivre à 4% du cuivre sont les suivantes :

Tableau III

Matériaux	Tensions	Densité de courant
Al pur	25 V	0.04 - 0.06 Amp/cm^2
Al + 4% Cu	22 V	0.03 - 0.06 Amp/cm^2

et les échantillons sont introduits sous tension dans l'électrolyte.

La température de l'électrolyte est maintenue pendant le polissage entre -58°C et -62°C par le mélange acétone-neige carbonique.

Le volume de l'électrolyte employé est d'environ 1000 cm^3 ce qui

permet d'avoir un volant thermique suffisant pour éviter un échauffement local important au niveau de l'échantillon.

Le refroidissement est contrôlé d'une façon rigoureuse : une basse température est en effet une condition essentielle si l'on veut éviter d'altérer la structure de trempe de l'aluminium ou des alliages par des échauffements importants de l'échantillon. Aussi la température de l'échantillon est-elle vérifiée par un thermocouple pendant le polissage : l'échauffement mesuré n'a jamais dépassé 10°C (θ = -54°C pour un échantillon plongé dans un électrolyte à -62°C).

La durée du polissage des échantillons massifs est d'environ 1/2 heure ; dans le cas de la préparation des lames minces il faut compter à peu près 1 heure avant l'apparition du 1er trou et les fragments sont entraînés dans le bécher puis recueillis par décantation.

Le lavage final de l'échantillon massif ou des lames minces est effectué dans un bécher contenant de l'alcool éthylique à -60°C.

Le maintien ultérieur des échantillons à basse température est aisément obtenu par immersion dans l'alcool à -60°C.

I - 2 - 3 - 3 - Résultats obtenus

Cas des échantillons massifs

Les essais de polissage des échantillons massifs (ayant 0.5 à 2 mm d'épaisseur) nous ont montré les faits suivants :

- le polissage optimum est obtenu avec une température d'électrolyte compris entre -58 et -62°C. Si la densité de courant est correcte (cf. tableau page 18) on obtient les meilleures surfaces dans le temps minimum.

- quand la température de l'électrolyte est inférieure à -70°C, la vitesse de dissolution devient très faible : pour avoir des conditions de polissage acceptables à -78°C il est nécessaire de monter la tension jusqu'à environ 30 volts.

- si la température de l'électrolyte s'élève au-dessus de -58°C les échantillons se recouvrent d'une pellicule blanche d'oxyde opaque qui gêne les observations.

- quand la densité de courant est supérieure à la valeur optimum mentionnée au tableau page 18 on peut avoir soit un dégagement de gaz dans le cas de l'aluminium (pour 0.10 amp/cm^2), soit une précipitation de cuivre sur la surface de l'échantillon dans le cas des alliages A-U4 (pour 0.20 mA/cm^2).

- si on augmente la vitesse de rotation de l'anode jusqu'à 60 tours par minute, les conditions de polissage deviennent très différentes: une tension élevée à 30 volts et une température abaissée à -78°C sont alors nécessaires pour obtenir un bon poli.

- quand le bain devient trop chargé en ions métalliques, on observe une oxydation des surfaces, en particulier dans le cas des échantillons d'alliage A-U4. L'utilisation des bains neufs évite cet inconvénient.

Cas de la préparation des lames minces

Dans ce cas, il est nécessaire de prévoir une préparation préliminaire utilisant la méthode de la "grande fenêtre" décrite au § I-2-2 et nos essais amènent les remarques suivantes :

- toute la surface des lames minces est exploitable et pas seulement les bords des fragments,

- à partir d'échantillons de 0.04 mm d'épaisseur ayant de 2 à 4 cm^2

surface, il est possible d'obtenir de 20 à 30 coupes minces de 1 à 2 mm2,

- les fragments obtenus, d'épaisseur homogène, sont très transparents vis-à-vis du faisceau électronique, ce qui permet l'observation des sous-structures, des dislocations et des précipités avec un bon contraste,
- dans l'alliage A-U4 il n'y a pas de dissolution électrolytique locale préférentielle, même si la matrice contient de gros précipités d'Al_2Cu ; on ne constate aucune variation d'épaisseur au niveau des joints de grains.

I - 2 - 4 - Conclusions

La méthode de polissage électrolytique à basse température avec un électrolyte méthanol-acide nitrique a donc permis d'obtenir de bonnes surfaces polies dans le cas de l'aluminium pur comme dans celui de l'alliage A-U4, ces surfaces sont aptes aux examens au microscope optique (échantillons massifs) ou au microscope électronique (lames minces).

Il convient d'insister sur le fait que cette technique élimine un des inconvénients majeurs des méthodes utilisant des bains de polissage à des températures supérieures à -20°C, à savoir les transformations éventuelles de la structure que subit l'échantillon pendant le temps de polissage lui-même.

DIMITROV (10) avait déjà bien montré que seul le polissage à très basse température permet d'éviter la recristallisation des métaux très purs durant la préparation micrographique des échantillons. En ce qui concerne les lacunes, qui font l'objet de la présente étude, les déterminations de DE SORBO (14) sur la résistivité des alliages Al-Cu à 2% de cuivre montrent que dès la température de -40°C, on peut observer des

variations de résistivité imputables à une ré-organisation des défauts du type lacunaire. On voit toute l'importance que revêt le polissage à basse température pour la préparation de nos éprouvettes.

I - 3 - OXYDATION ANODIQUE

I - 3 - 1 - Généralités

Afin de pouvoir définir l'influence éventuelle de la structure et de l'épaisseur de la couche d'oxyde sur la formation des figures thermiques à la surface des cristaux d'aluminium pur et d'alliage aluminium-cuivre à 4% de cuivre, nous avons déterminé les conditions expérimentales permettant d'obtenir des films d'oxyde anodique d'épaisseur homogène dans chaque cristal.

On sait que l'épaisseur d'une couche d'oxyde anodique dépend d'un certain nombre de facteurs dont les principaux sont les suivants :

- l'orientation cristalline des surfaces à oxyder (19 , 20),
- la perméabilité du film d'alumine, quand l'épaisseur du film augmente (21),
- la densité de courant qui dépend elle-même de la composition et de la température de l'électrolyte.

Les 2 premiers facteurs jouent dès le début de l'oxydation mais le second ne devient important que si le traitement anodique se prolonge ; par compensation les cristaux très oxydés au début sont rattrapés par les autres. Cette distinction permet de comprendre notamment l'anisotropie d'épaisseur extrêmement marquée que présentent les films très minces, particulièrement sensibles au facteur orientation cristalline.

Afin de pouvoir mettre en évidence l'élimination des lacunes thermiques présentes dans les cristaux grâce à la formation des figures thermiques, il est nécessaire d'avoir une couche d'oxyde d'épaisseur faible (environ 200 à 400 Å) et homogène.

L'épaisseur de la couche d'oxyde anodique doit en effet être équivalente à celle obtenue par oxydation thermique sur un échantillon recuit à l'air à 600°C pendant environ 1 heure (22).

I - 3 - 2 - Techniques expérimentales

I - 3 - 2 - 1 - Oxydation anodique de l'aluminium

Les essais entrepris ont porté sur des plaquettes d'aluminium de 20 mm de large, 40 mm de long et 2 mm d'épaisseur. La composition des aluminiums utilisés est donnée dans le tableau suivant :

Tableau IV

Repère	Concentration des impuretés x 10^{-6} (en poids)						
	Fe	Si	Cu	Mg	Ti	V	Zn
A - 20	20	6	5	5	<10	<10	<10
A - 150	150	<10	<10	<5	<10	<10	<10
A - 300	300	6	10				

Les échantillons avant d'être oxydés anodiquement ont été polis électrolytiquement de la façon suivante :

- Polissage initial durant 4 à 6 minutes avec agitation dans un bain contenant 80% d'alcool éthylique et 20% d'acide perchlorique (12). Pour une température de l'électrolyte de l'ordre de 7°C et avec une tension à vide de 10 V, on obtient une vitesse de dissolution de 0.03 mm par minute. Ce premier polissage permet d'éliminer rapidement la couche superficielle d'oxyde formée au cours du recuit d'homogénéisation, et donne une surface brillante presque sans perturbations mais non utilisable pour des observations au microscope.

- Polissage final durant 5 minutes avec agitation dans le bain

acéto-perchlorique préconisé par JACQUET (17) ; la tension à vide appliquée est comprise entre 28 et 30 volts, et, pour une température du bain à 10°C environ, la vitesse de dissolution est de 0.01 mm par heure.

Les surfaces polies sont alors aptes aux examens micrographiques.

Il faut remarquer que le polissage électrolytique en 2 étapes nous a permis de réduire considérablement le temps de polissage (une durée de 2 heures a pu être réduite à 10 ou 15 minutes).

La cellule d'oxydation anodique comporte :

- un électrolyte qui est une solution d'acide tartrique à 3% en poids, portée à un pH de 5,5 grâce à une addition d'ammoniaque concentrée (23). A cette solution nous avons ajouté 2 cm^3 par litre d'un agent mouillant (Teepol) pour favoriser la formation d'une couche d'oxyde homogène. La température du bain est maintenue à 20°C durant l'électrolyse.
- une cathode formée par deux plaquettes symétriques d'aluminium ayant la même composition et les mêmes dimensions que l'échantillon,
- une anode constituée par l'échantillon d'aluminium à oxyder et placée à égale distance entre les 2 cathodes.

Pendant l'oxydation, l'échantillon est animé d'un mouvement de rotation (25 tours par minute).

Avant chaque essai la cathode et la pince porte-échantillon sont décapées chimiquement ; cette précaution est nécessaire si l'on veut avoir des conditions expérimentales reproductibles.

Après l'oxydation anodique, les échantillons sont lavés à l'eau, rincés à l'alcool et séchés à l'éther.

Note - Quelques essais d'oxydation de l'aluminium ont été traités avec un électrolyte constitué par une solution à 20% d'acide sulfurique en poids. Les conditions d'électrolyse sont alors les suivantes :

- température : 20°C
- densité de courant : 1,3 A/cm^2
- durée d'oxydation : 3 à 5 secondes.

Mais nous verrons au § II-1-4-1-6 que l'oxyde ainsi obtenu ne permet la formation des figures thermiques que sur certains cristaux.

I - 3 - 2 - 2 - Oxydation anodique de l'alliage aluminium-cuivre à 4% de cuivre

L'oxydation anodique des alliages aluminium-cuivre est une opération assez délicate et de nombreux auteurs (réf. 24 à 28)ont déjà signalé les phénomènes liés à la présence du cuivre en solution solide. Nous citerons seulement les plus remarquables :

- diminution de la vitesse d'oxydation,
- présence de cuivre dans la couche d'oxyde, qui perturbe l'électrolyse,
- variation de la résistance chimique du film et phénomènes de corrosion,
- attaque préférentielle des joints de grains,
- limitation étroite des températures d'électrolyse et des densités de courant admissibles si l'on veut obtenir un film d'oxyde anodique homogène et compact.

Nous avons donc été conduit à déterminer les conditions expérimentales permettant d'obtenir une couche d'oxyde anodique transparente, homogène sur chaque cristal du métal et de faible épaisseur (similaire à l'épaisseur de la couche d'oxyde thermique formée à 500°-550°C.)

Les échantillons à gros grains d'alliage aluminium-cuivre à 4% de

cuivre sont trempés et polis électrolytiquement à basse température avant le traitement d'oxydation (voir § I-2). Nous sommes donc parti d'échantillons où le cuivre est en solution solide, condition la plus favorable pour obtenir une couche d'oxyde homogène.

Pour l'oxydation anodique, nous avons employé l'électrolyse classique contenant 180 gr/l d'acide sulfurique et durant l'opération, l'électrolyte a été maintenu à une température de 15°C, l'échantillon étant animé d'un mouvement de rotation (25 tours par minute).

Après l'oxydation, les échantillons sont lavés à l'eau et rincés à l'alcool et à l'éther. Un examen en lumière blanche permet alors de percevoir des teintes d'interférence qui varient d'un grain à l'autre.

I - 3 - 3 - Résultats obtenus

I - 3 - 3 - 1 - Cas de l'aluminium

Influence de la tension

Pour tenter d'obtenir une couche d'oxyde homogène et transparente, nous avons fait varier la tension d'alimentation aux bornes de la cellule de 5 en 5 V depuis 10 V jusqu'à 60 V, en relevant dans chaque cas, la variation du courant pendant les 2 premières minutes de l'électrolyse.

Il convient de signaler que l'oxydation anodique débute par une très forte pointe d'intensité difficilement mesurable avec précision, mais qui est nettement supérieure à l'intensité de régime. Cette pointe pour des tensions de 45 à 60 V, atteint 5 Amp. par dm^2 environ.

L'examen des courbes de la figure 7 montre, après la pointe d'intensité initiale, que :

- pendant les premières secondes pour toutes les tensions essayées (comprises entre 15 et 60 V) l'intensité du courant diminue assez rapidement, puis se stabilise pratiquement au bout de 30 à 40 secon-

- pour une tension d'alimentation relativement élevée, d'environ 40 à 60 V, l'intensité diminue durant les 30 premières secondes puis se stabilise à une valeur légèrement supérieure à 0,5 mA/dm^2.

On constate que l'intensité du courant augmente lorsque la tension croît, mais la vitesse de variation du courant (pour des tensions comprises entre 40 et 60 V) n'est pas beaucoup influencée par la valeur de la tension. Par conséquent, la cinétique de formation de la couche d'oxyde est très rapide et la haute densité de courant initiale diminue pour atteindre environ 0,5 mA/dm^2 en quelques dizaines de secondes. Ce résultat est en accord avec les valeurs données par HASS (23).

Par ailleurs, nous avons constaté que, pour une tension donnée, l'intensité observée pendant l'oxydation anodique ne dépend pas de la pureté de l'aluminium (au moins dans la gamme allant de 20 à 300.10^{-6} de fer).

L'épaisseur du film d'oxyde électrolytique croît linéairement avec la tension appliquée et sa croissance tend à se stabiliser, le film formant une couche d'arrêt, d'épaisseur fonction de la tension. L'épaisseur recherchée sera donc d'autant plus vite atteinte que la tension (et de ce fait l'intensité de courant initiale) est plus élevée.

Nous avons utilisé des tensions de 30 à 40 volts, lesquelles nous ont permis d'obtenir des couches d'oxyde d'épaisseur équivalente (23) à la couche d'oxyde thermique (environ 400 Å à 600°-650°C) permettant parfaitement la formation des figures thermiques.

I - 3 - 3 - 2 - <u>Cas des alliages aluminium-cuivre</u>

Dans le cas des échantillons polycristallins d'alliage aluminium-cuivre à 4% de cuivre trempés et polis électrolytiquement à basse température, l'utilisation de l'électrolyte à base d'acide sulfurique permet

d'obtenir des films d'oxyde anodique ayant une épaisseur similaire à celle de la couche d'oxyde thermique. Les meilleurs résultats ont été obtenus avec une tension de 17 volts : 10 secondes d'oxydation suffisent pour avoir un film d'oxyde d'environ 300 Å d'épaisseur.

On note cependant une forte anisotropie de la vitesse d'oxydation anodique en fonction de l'orientation des cristaux.

I - 3 - 4 - Conclusions

L'utilisation de bains d'oxydation anodique, tant dans le cas de l'aluminium que dans celui des alliages du type A-U4, nous a permis de préparer des échantillons utilisables pour nos essais sur les figures thermiques, notamment dans le cas des traitements réalisés à des températures inférieures à 550°C.

Il faut insister sur le fait que les couches d'oxyde anodique ainsi obtenues ont l'avantage de ne pas présenter de discontinuités au niveau des joints de grains, ce qui permet de contrôler plus sûrement la formation éventuelle des figures thermiques dans ces régions particulières.

Figure 1 - Traitements thermiques appliqués à des échantillons polycristallins de l'alliage A-U4.

Figure 2 - Influence du taux d'écrouissage sur le grossissement du grain pour le traitement de type "B" avec palier à 470 °C.

Figure 3 - Influence du taux d'écrouissage par laminage sur la grossissement du grain de l'alliage Al-Cu au cours d'un traitement avec palier à 470 °C.

Figure 4 - Schéma montrant les zones vernies dans la méthode de la " grande fenêtre ".

A: surface non vernie pour permettre la fixation de l'échantillon à l'anode.

B: niveau maximun atteint par l'électrolyte.

C: non vernie.

D: fenêtre (future lame mince) de 2 a 4 cm^2 de surface.

Figure 5 - Schéma de vernissage avec plusieurs fenêtres D, D', D".

Figure 6 - Schéma de cellulle de polissage électrolytique à basse température.

Figure 7 - Variation de l'intensité du courant pendant l'oxydation anodique de l'aluminium, pour des tensions variant de 15 a 60 V.

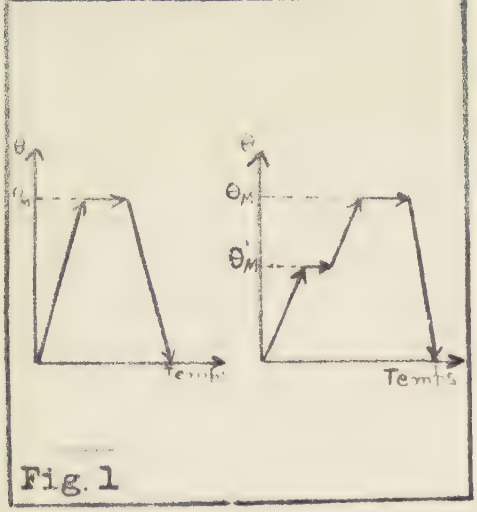


Fig. 1

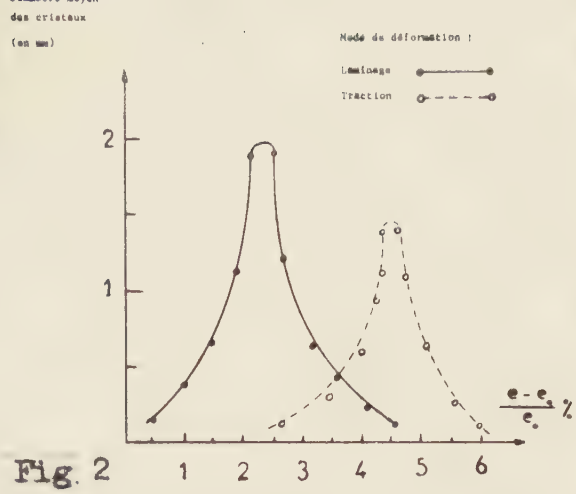


Fig. 2

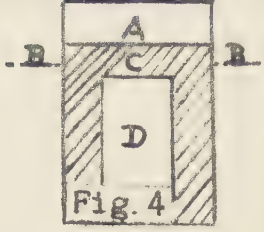


Fig. 4

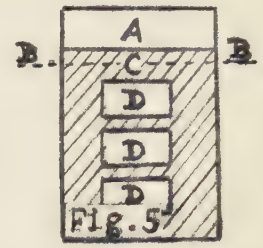


Fig. 5

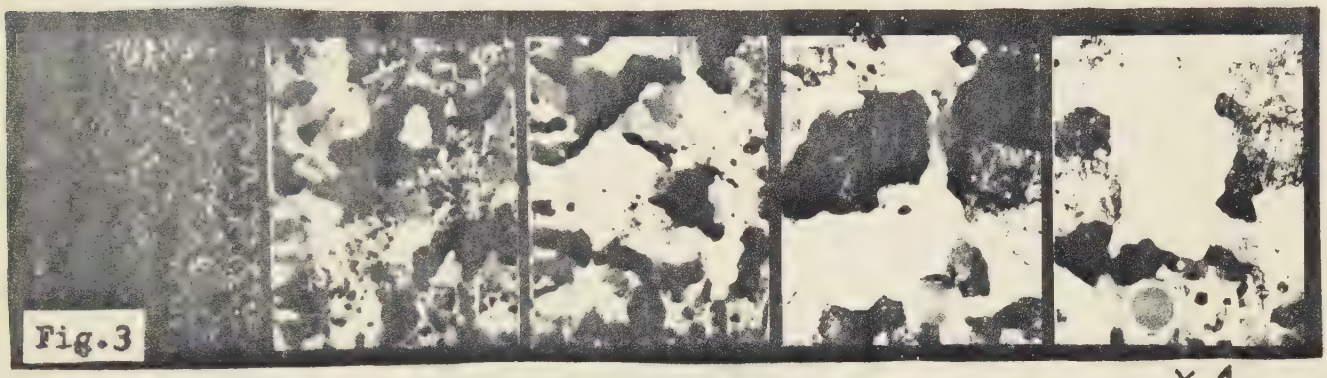


Fig. 3

E % = 0 1.0 1.5 2.0 2.5 × 1

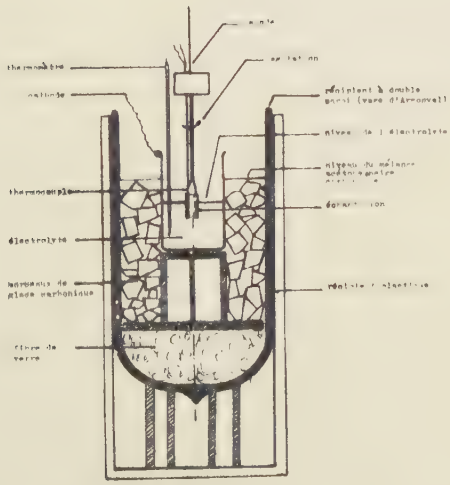


Fig. 6

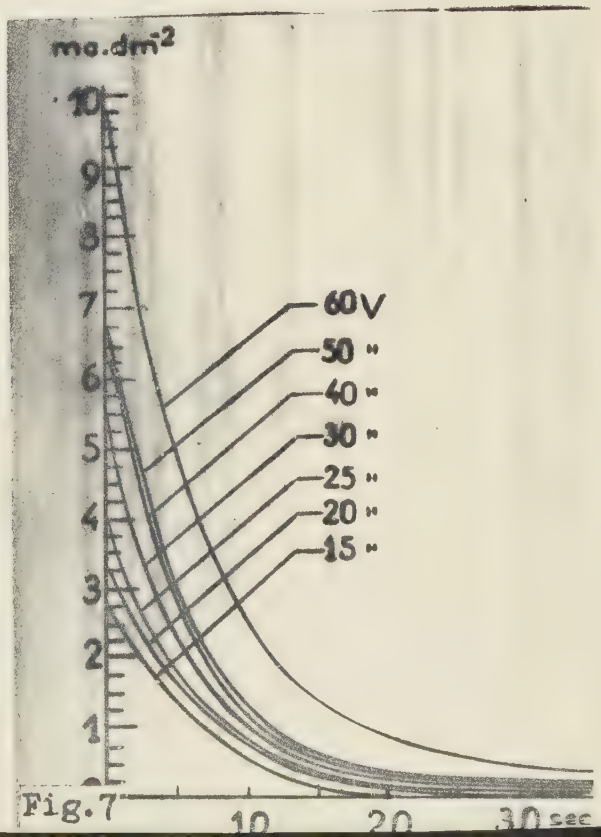


Fig. 7

CHAPITRE II

ETUDE DE LA FORMATION DES "FIGURES THERMIQUES" AU COURS DE TRAITEMENTS DE TREMPE ETAGEE

- Cas de l'aluminium -

Le développement des "figures thermiques" au cours du refroidissement de cristaux d'aluminium a été attribué au rassemblement des lacunes thermiques en sursaturation, lesquelles se trouvent piégées en certains points privilégiés de l'interface métal-oxyde, vraisemblablement en correspondance avec les émergences des lignes de dislocations (1) (8).

Ce phénomène a été mis à profit pour contrôler, à l'aide du microscope optique, l'élimination des lacunes dans l'aluminium pur et dans l'alliage aluminium-cuivre à 4% de cuivre, au cours de traitements de trempe étagée.

Dans le présent chapitre, nous préciserons quelques facteurs essentiels susceptibles de modifier la cinétique de formation de ces figures thermiques dans le cas de l'aluminium.

II - 1 - Métaux utilisés

L'étude de l'apparition et du développement des figures thermiques a été réalisée sur 3 aluminiums A-20, A-150 et A-300, titrant respectivement 20, 150 et 300.10^{-6} de fer.

Le tableau suivant indique les teneurs en impuretés dosées pour chacun des aluminiums utilisés, qui se distinguent essentiellement par leur titre en fer :

Tableau V-Analyse des divers aluminiums utilisés

Références des Aluminiums	Concentration des impuretés x 10^{-6} (en poids)							Température de mise en solution totale du fer (30)
	Fe	Si	Cu	Mg	Ti	V	Zn	
A - 20	20	6	5	5	<10	<10	<10	437°C
A - 150	150	<10	<10	<5	<10	<10	<10	557°C
A - 300	300	6	10					616°C

II - 2 - Préparation des échantillons

L'élaboration des échantillons d'aluminium a été effectué à partir de largets de 10,5 mm d'épaisseur. Après un décapage et un polissage mécanique initial, la préparation des éprouvettes comporte les traitements suivants :

- Recuit d'homogénéisation durant 24 heures à 640°C et refroidissement à l'air;

- Laminages successifs avec recuits intermédiaires à 640°C suivis de refroidissements à l'air et de décapages dans le réactif de KELLER (25). Entre 2 recuits, l'écrouissage imposé est de 100% environ et l'on obtient finalement des tôles de 0,2 cm d'épaisseur Après le dernier laminage, les échantillons sont découpés sous forme de plaquettes de 4 cm. de long sur 2 cm de large et décapés,
- Recuit à 350°C pendant 2 heures et décapage,
- Ecrouissage légèrement supérieur à l'écrouissage critique (environ 5% par laminage),
- Recuit à 630°C pendant 8 jours,
- Refroidissement dans le four à une vitesse d'environ 150°C/heure pour que la sursaturation des cristaux en lacunes thermiques soit faible.

La structure ainsi obtenue définit l'état initial des échantillons polycristallins d'aluminium utilisés, dont la taille moyenne des grains est de 1 à 2 cm^2.

Les plaquettes sont alors polies électrolytiquement (cf. § I-3-2-1) et, éventuellement oxydés anodiquement (cf. § I-3-3-1).

II - 3 - Traitements thermiques réalisés

Les éprouvettes ont été soumises à des traitements de trempe étagée tels que celui schématisé sur la figure 8 . De nombreux facteurs pouvant intervenir pour modifier les résultats obtenus, plusieurs types de trempe étagée ont été réalisés, non seulement en faisant varier les valeurs des températures maximale θ_M et minimale θ_m, mais aussi en modifiant la vitesse de chauffage entre 20°C et θ_M ou celle du refroidissement entre θ_M et θ_m. L'effet de la durée du maintien aux températures θ_m ou θ_m a également été envisagé.

Au cours de nos essais, les valeurs indiquées ci-après ont été utilisées :

Tableau VI

$400° < \theta_M < 640°C$	
$150° < \theta_m < 450°C$	
$5° < \Delta\theta < 490°C$	
Durée à θ_M	: 5 à 60 mn
Durée à θ_m	: 1 à 180 mn
Vitesse de chauffage	: 2,5°C à 300°C/mn
Vitesse de trempe	: 2°C à $\geqslant$ 150.000°C/mn [31 à 34]

Les deux vitesses de chauffage indiquées ont été obtenues par la mise en place des éprouvettes dans le four déjà porté à la température θ_M (v_c = 300°C/minute) ou par montée lente de la température du four depuis l'ambiante jusqu'à θ_M.

Les diverses vitesses de refroidissement indiquées dans le tableau, pour passer de θ_M à θ_m ont été réalisées de la façon suivante :

- l'air chaud ($v_r \approx$ 2°C par seconde)
- l'huile portée à 180°C ($v_r \approx$ 200°C par seconde)
- le bain de sel fondu (50% NO_3K, 50% NO_3Na pour $180 < \theta_m < 450°C$) ($v_r \approx$ 800°C par seconde)
- le bain d'étain (pour $450°C < \theta_m < 635°C$) ($v_r \approx$ 1000°C par seconde)
- l'eau + 45% Cl_2Ca à 20°C ($v_r \approx$ 2500°C par seconde).

Les vitesses moyennes de refroidissement ont été estimées d'après la bibliographie (31) (34), compte tenu de la nature des éprouvettes, de leurs dimensions (notamment leur épaisseur) et de leur forme.

- Réalisation des essais de trempe étagée

Afin d'assurer le plus rapidement possible le passage des éprouvettes depuis le four à la température θ_m jusque dans les divers milieux de trempe portés à la température θ_m, nous avons adopté le système des fours verticaux superposés (fig. 9). Une longue tige-support soigneusement guidée assure une translation bien axiale des éprouvettes ; des repères permettent de placer exactement les échantillons dans la zone du four où le gradient est négligeable. On réalise ainsi très facilement les diverses opérations nécessaires :

- passage du four à θ_M dans le four à θ_m pour la trempe à l'air chaud,
- passage du four à θ_M dans un four à creuset contenant le bain de sel, le bain d'étain ou l'huile.

Dans tous les cas, les éprouvettes sont brutalement refroidies à la fin de leur séjour à la température θ_m par immersion dans une saumure à base de Cl_2Ca portée à -50°C afin de "geler" la structure obtenue à θ_m.

- Remarques importantes

a) cas des trempes dans les bains de sel ou d'étain

Il est absolument indispensable d'éviter toute altération de l'oxyde superficiel au contact du bain de trempe. Pour atteindre ce but, les éprouvettes sont au préalable protégées par une mince feuille d'aluminium de 0,04 mm d'épaisseur oxydée thermiquement.

b) cas des trempes d'échantillons semi-minces (épaisseur de l'ordre de 0,04 mm)

Si les éprouvettes ont une épaisseur très faible, et c'est le

cas des ébauches de lames minces pour lesquelles e = 0.04 mm, la technique de préparation avec "cadre rigide" (cf. § I-2-2) a permis de limiter au maximum les déformations dues à la trempe.

Afin que les vitesses de refroidissement soient comparables à celles réalisées sur les éprouvettes épaisses de 2 mm, les lames minces sont placées entre deux tôles de 1 mm. d'épaisseur chacune et constituées du même matériau que les lames minces elles-mêmes.

II - 4 - Résultats obtenus

Le programme des traitements de trempe étagée a été établi non seulement pour faire intervenir le facteur "nombre de lacunes" disponible entre Θ_M et Θ_m mais aussi pour mettre en évidence l'effet de la mise en solution des impuretés et le rôle de la structure de l'oxyde superficiel.

En ce qui concerne les concentrations d'équilibre en lacunes permettant de connaître le nombre de lacunes existant par cm^3 à diverses températures, nous avons utilisé l'équation (35) :

$$C_{lac} = A \exp(-E_F/kT) \qquad [1]$$

où

E_F : énergie de formation d'une lacune (0,76 eV pour l'aluminium pur)

A : facteur d'entropie évalué à exp 2,4 pour l'aluminium d'après divers auteurs (5, 36, 37).

Nous distinguons 2 types de traitements selon la valeur de la température maximale Θ_M

- Les traitements avec $\Theta_M \geq 525°C$, température à laquelle le film d'oxyde thermique recristallise, ont en effet permis sur des échantillons de 2mm d'épaisseur pour certaines valeurs de $\Delta\Theta$ et pour certaines vitesses de refroidissement, la formation des figures thermiques à la surface des cristaux initialement polis électrolytiquement. Ce phénomène apparaît seulement au cours du refroidissement depuis la température Θ_M et ne se pro

pas ni durant le chauffage initial, ni pendant le maintien de l'échantillon à la température θ_M constante (8).

- Les traitements avec $\theta_M < 525°C$, température à laquelle le film d'oxyde thermique reste amorphe. La formation des figures thermiques est presque nulle, du moins dans les conditions de nos expériences. Par contre, l'utilisation de films d'oxyde anodique nous a permis d'observer la formation de figures thermiques, du moins pour certaines valeurs de $\Delta\theta$.

II - 4 - 1 - Cas des traitements avec $\theta_M > 525°C$

Quand θ_M est supérieur à 525°C, le développement de figures thermiques observables au microscope optique, nécessite au cours du refroidissement, un certain écart minimum $\Delta\theta = \theta_M - \theta_m$ qui est sous la dépendance de nombreux facteurs parmi lesquels nous citerons :

- le nombre de lacunes nécessaires pour former des figures thermiques,
- la vitesse de refroidissement imposée entre la température maximale (θ_M) et la température de trempe (θ_m),
- l'épaisseur de l'échantillon.

Cependant, d'autres paramètres sont susceptibles de modifier la cinétique de formation des figures thermiques d'une part, la densité, la dimension et la distribution des figures à la surface des cristaux d'autre part. Nous citerons notamment :

- la pureté du métal (6),
- l'état de polygonisation des cristaux (2,4,8),
- la nature et l'épaisseur de la couche d'oxyde (38),
- les tensions introduites par la trempe,
- la durée du séjour à θ_M ou θ_m,
- les énergies interfaciales métal-vide, oxyde-vide et métal-oxyde au niveau des figures thermiques(39).

D'autres facteurs tels que la vitesse de chauffage des échantillons

au début de chaque traitement ne jouent qu'un rôle secondaire.

II - 4 - 1 - 1 - Rôle du nombre de lacunes disponibles pour former des figures thermiques entre θ_M et θ_m

L'amplitude $\Delta\theta$ du refroidissement nécessaire pour observer l'apparition des figures thermiques dépend principalement, pour une épaisseur donnée de l'échantillon, de la température θ_M, c'est-à-dire de la concentration initiale en lacunes.

On trouve (8) que la valeur de $\Delta\theta$ augmente d'une manière exponentielle lorsque la température θ_M diminue. Par ailleurs, il faut considérer qu'une quantité minimale de lacunes est nécessaire pour la formation des figures thermiques. La valeur de $\Delta\theta$ est fonction non seulement de la température θ_M, mais dépend aussi de la vitesse de refroidissement (cf § II -4-1-2) et de l'épaisseur de l'échantillon (cf § II -4-1-3).

Pour déterminer la quantité de lacunes ΔN disponibles entre θ_M et θ_m, nous avons utilisé la relation :

$$\Delta N = N (L_M - L_m) \qquad [2]$$

où N est le nombre de sites cristallins par unité de volume du métal, L_M et L_m étant les concentrations d'équilibre des lacunes aux températures θ_M et θ_m respectivement. Les valeurs des concentrations ont été calculées à partir de l'équation [1] indiquée au § II -4.

Les courbes de la figure 10 montrent, pour 7 températures θ_M différentes (comprises entre 350°C et 650°C) la quantité de lacunes disponibles pour des valeurs de $\Delta\theta$ comprises entre 1°C et 620°C. Ces courbes montrent que, pour une quantité de lacunes disponibles donnée, la valeur de $\Delta\theta$ augmente quand θ_M diminue et que, pour une même valeur de $\Delta\theta$, la quantité de lacunes disponibles augmente avec la température θ_M.

a) Cas où la température maximale est élevée

Les résultats expérimentaux obtenus après trempe étagée d'échantillons d'aluminium à 20 et 150.10^{-6} de fer en poids ayant 2 mm d'épaisseur

refroidis au four à 5°C/sec sont indiqués dans le tableau VII.

Ces résultats mettent en évidence les principaux faits suivants :

- la dimension et la densité des figures thermiques par Cm^2 varient avec $\Delta\theta$. Pour une température θ_M donnée, plus $\Delta\theta$ est important, plus les figures sont petites et vice versa,
- sur chaque échantillon, le nombre des figures thermiques par unité de surface varie peu d'un cristal à l'autre, les dimensions moyennes des figures sont également peu variables (figure 11).

Pour certaines conditions de traitement on observe en fait des anomalies à l'interface métal-oxyde, surtout visibles en fond noir (figures 12 et 13) qui apparaissent plutôt comme un gravage que des "micro-figures thermiques" : celles-ci en effet, se distinguent des figures thermiques par l'absence de contours géométriques. D'autre part, ce gravage n'existe jamais au niveau du liséré exempt de figures thermiques au voisinage des joints ou des sous-joints.

- les figures sont en général des contours géométriques, mais elles sont quelquefois arrondies, leur forme dépend de l'orientation du cristal sous-jacent (1, 8) (figures 14 et 15),
- le nombre de lacunes éliminées par cm^2 de surface sous forme de figures thermiques permet de calculer la profondeur du cristal ayant fourni ces lacunes. La figure 10 donne en effet le nombre de lacunes disponibles par cm^3 pour chaque valeur de θ_M et de $\Delta\theta$. Le rapport :

$$\frac{N_{lacunes.\ cm^{-2}}}{N_{lacunes.\ cm^{-3}}} = e_m \qquad [3]$$

donne la profondeur minimale e_m du cristal ayant fourni les lacunes éliminées sous forme de figures thermiques, ce qui suppose implicitement que toutes les lacunes disponibles entre θ_M et θ_m sont utilisées pour former des figures thermiques.

Tableau VII

θ_M °C température maximale	θ_m °C température minimale	θ $\theta_M - \theta_m$	V_R °C/sec	Volume moyen d'une figure thermique en μ^3	Nombre de figures thermiques par cm^2	Nombre de lacunes disponibles par cm^3 fig.13	Nombre de lacunes éliminées par cm^2 de surface. Valeur expérimentale
600	450	150	2 à 5	6,3 μ^3 16 μ^3	0,2 x 10^6 0,6 x 10^6	23,8x10^{18}	7,6 x 10^{16} 5,8 x 10^{17}
600	400	200	2 à 5		1,3 x 10^6 2,4 x 10^6	25,8x10^{18}	
600	350	250	2 à 5	2 μ^3 3,5 μ^3	3,1 x 10^6 4,3 x 10^6	26,7x10^{18}	3,7 x 10^{17} 9 x 10^{17}
600	300	300	2 à 5		3,9 x 10^6 5,9 x 10^6	27 x 10^{18}	
600	200	400	2 à 5	1,3 μ^3 2,2 μ^3	7,3 x 10^6 8 x 10^6	27,2x10^{18}	5,7 x 10^{17} 1,1 x 10^{18}

Remarque importante

Certains traitements thermiques provoquent la formation de figures de dimensions variables sur un même cristal. Par ailleurs la profondeur des figures thermiques toujours faible, de l'ordre de 1 μ, est difficile à mesurer avec précision. Il en résulte que le calcul du volume total des lacunes éliminées sous forme de figures thermiques sur chaque cm^2 de cristal peut être entaché d'une erreur atteignant $\pm$ 50%. En conséquence, les valeurs calculées pour la profondeur minimale "e" du cristal fournissant les lacunes et figurant dans les différents tableaux sont des ordres de grandeur. On comprend ainsi les écarts importants parfois constaté en ce qui concerne les valeurs de "e" calculées pour des traitements thermiques identiques.

b) Cas où la température maximale est basse

Dans le cas des traitements avec θ_M = 400°C, θ_m = 190°C (avec 1/2 heure de séjour à θ_m)et avec une vitesse de refroidissement d'environ 200°C/sec (trempe à l'huile), l'oxydation anodique préliminaire de la surface nous a permis d'obtenir sur certains cristaux une densité de figures thermiques d'environ 2 à 4.10^6 figures par cm^2, ayant un volume compris entre 0,03 et 0,12 μ^3: la quantité de lacunes éliminées sous forme de figures est d'environ $5,7 \times 10^{15}$ à $2,1 \times 10^{16}$ lacunes par cm^2 ce qui est en accord avec le nombre de lacunes disponibles par cm^3 à condition de prendre comme profondeur du cristal fournissant les lacunes, une valeur e_m = 156 donnée par la formule ci-dessous :

$1,34.10^{18}$ lacunes.cm^{-3} $(1,5 \times 10^{-2})$ cm. $\approx 2,1 \times 10^{16}$ (cf. courbe figure 13).

D'après les résultats obtenus avec θ_M = 600°C et avec une faible vitesse de refroidissement (cf tableau VII), le nombre de lacunes éliminées varie en fonction de la quantité de lacunes disponibles, c'est-à-dire en fonction de $\Delta\theta$.

II - 4 - 1 - 2 - Influence de la vitesse de refroidissement

Dans le but d'étudier de façon systématique l'influence de la

vitesse de refroidissement sur le développement des figures thermiques, nous avons utilisé les 5 milieux de trempe déjà signalés (cf.II-3- Tableau VI).

Nous avons trouvé que si la vitesse de refroidissement V_R varie de 2°C/sec à 1000°C/sec, la valeur minimale de $\Delta\theta$ dépend étroitement de V_R. Nous distinguerons pour θ_M compris entre 600 et 640°C les 4 cas suivants :

a) <u>La vitesse de refroidissement est faible</u> :(comprise entre 2°C/sec -refroidissement au four- et 5°C/sec -trempe à l'air-). Pour que l'apparition des figures thermiques soit possible, il est nécessaire que $\Delta\theta$ soit supérieur à 150°C environ. La densité des figures thermiques, pour une même température θ_M, peut varier en fonction de $\Delta\theta$ entre 5.10^5 et 2.10^7 figures par cm^2. La figure 16 indique les variations du volume total et de la densité des figures thermiques formée en fonction de $\Delta\theta$ pour des températures θ_M comprises entre 550°C et 640°C. Dans ces conditions de refroidissement, le volume des figures varie également (1.0 - 66 μ^3) selon la valeur de $\Delta\theta$.

Les figures 17 et 18 montrent par ailleurs les figures thermiques obtenues avec de faibles vitesses de refroidissement. On notera que la largeur de la région exempte de figures thermiques à proximité des joints de grains, augmente lorsque la vitesse de refroidissement diminue 1-8 .

b) <u>La vitesse de refroidissement est assez élevée</u> (environ 200°C/sec) Les figures sont très petites, leur volume varie seulement de 0,05 μ^3 jusqu'à 2,1 μ^3 et leur densité est toujours proche de 10^7 figures par cm^2. (Comparer la figure 19 avec les figures 17 et 18).

c) <u>La vitesse de refroidissement est élevée</u> : deux cas sont alors à considérer selon la valeur de $\Delta\theta$ et la nature du milieu de trempe :

- par trempe en bain de sel ($V_R \simeq 800$°C/sec) à des températures θ_m comprises entre 200°C et 500°C la valeur de la densité des

figures thermiques est comprise entre 1 et 3.10^7 par cm^2,

- par trempe en bain d'étain ($V_R \approx 1000°C/sec$) porté à une température θ_m peu inférieure à la température $\theta_M = 640°C$; la densité des figures thermiques est de l'ordre de 10^6 ou de 10^7 figure par cm^2 selon que $\Delta\theta$ varie de 5°C à 50°C. Il faut noter que pour $\Delta\theta = 5°C$, les figures thermiques sont en général de plus grande dimensions.

  Lorsque $\Delta\theta = 50°C$, le liséré privé de figures thermiques est inexistant : seul l'absence de gravage au niveau de l'interface métal-oxyde permet de localiser la trace des joints et des sous-joints (les figures 20 et 21 correspondent respectivement à $\Delta\theta = 5°$ et 50°C).

Par conséquent, plus $\Delta\theta$ est grand, plus les figures s'affinent : en d'autres termes, plus le choc thermique est important, plus les figures sont petites. Les courbes de la figure 22 montrent, dans le cas de 2 vitesses de refroidissement, la relation entre densité des figures thermiques et $\Delta\theta$.

d) <u>La vitesse de refroidissement est très élevée</u> (trempe dans l'eau salée à 20°C donnant une vitesse de refroidissement de l'ordre de 2500°C/Sec) (31). Pour $400 < \Delta\theta < 600°C$, les figures thermiques n'apparaissent pas: dans ces conditions les lacunes restent vraisemblablement toutes "gelées" à l'intérieur des cristaux.

II - 4 - 1 - 3 - <u>Influence de l'épaisseur de l'échantillon</u>

Nos résultats expérimentaux nous ont montré par ailleurs que :

- La valeur de $\Delta\theta$ nécessaire pour l'apparition des figures thermiques pour une température θ_M donnée, et pour une même épaisseur d'échantillon, est fortement influencée par la vitesse de refroidissement.

- La quantité de lacunes disponibles au cours du refroidissement depuis θ_M jusqu'à θ_m dépend de l'épaisseur de l'échantillon : sur

Tableau VIII

[θ_M 626°C, θ_m 20°C, V_R 5°C Sec.]

Epaisseur de l'échantillon	Volume moyen des figures thermiques	Densité des figures thermiques	Nombre de lacunes disponibles par cm^3 (figure 13)	Nombre de lacunes éliminées par cm^2 de surface sous forme de figures thermiques
0,2 mm	0,63 (*)	$0,5 \times 10^6$ cm^{-2} $1,3 \times 10^6$ cm^{-2}	$3,6 \times 10^{19}$	$2,05 \times 10^{16}$ $5,33 \times 10^{16}$
2 mm	0,63 (*)	11×10^6 cm^{-2} 14×10^6 cm^{-2}	$3,6 \times 10^{19}$	$4,51 \times 10^{17}$ $5,74 \times 10^{17}$

(*) Nous estimons que la vitesse de refroidissement de l'échantillon de 0,2 mm d'épaisseur est plus élevée que celle de l'échantillon de 2 mm

une éprouvette de 2 mm d'épaisseur, avec θ_M = 640°C et pour une valeur de $\Delta\theta$ comprise entre 300 et 600°C (V_R = 2 à 5°C/sec), nous avons trouvé de 1,3 à $2,7.10^7$ figures thermiques par cm^2 (figure 25)

- La plus faible quantité de lacunes éliminées sous forme de figures thermiques (avec θ_M = 640°C, $\Delta\theta$ = 500°C et V_R = 5°C/sec) a été trouvée sur un échantillon de 2/10 mm d'épaisseur. Ce nombre est d'environ $2,10^{16}$ à $5,3.10^{16}$ lacunes par cm^2 de surface puisque l'on trouve 0,5 et $1,3.10^6$ figures de volume 0,63 μ^3 par cm^2 de surface. Cette quantité de lacunes nous donne comme profondeur minimale du cristal ayant fourni des lacunes éliminées sous forme de figures thermiques, la valeur de 5,4 à 14 μ.

- Pour une vitesse de refroidissement donnée, la comparaison entre le nombre calculé de lacunes éliminées par cm^2 de surface (à partir de valeurs de la figure 10) et la valeur déduite du nombre de la taille des figures thermiques formées, indique une différence qui dépend de l'épaisseur de l'échantillon : lorsque l'épaisseur est faible, la profondeur calculée est moins importante. Si l'on considère par exemple le cas de 2 échantillons l'un de 2 mm d'épaisseur, l'autre de 0,2 mm, les épaisseurs sont dans le rapport de 1 à 10. On trouve expérimentalement pour la quantité de lacunes éliminées sous forme de figures thermiques après un même traitement. (θ_M = 626°C, θ_m = 20°C, V_R = 5°C/sec), les valeurs indiquées dans le tableau VIII.

Ceci nous montre que la densité des figures thermiques formées et le nombre de lacunes éliminées est une fonction de l'épaisseur de l'échantillon. Par ailleurs, la profondeur minimale du cristal ayant fourni les lacunes est aussi différente. Dans le cas des éprouvettes de 100 μ d'épaisseur trempées à l'air à partir de 640°C avec $\Delta\theta$ = 150 et 300°C, nous n'avons pas observé de figures thermiques.

II - 4 - 1 - 4 - Influence des impuretés : cas du fer

La pureté de l'aluminium a une forte influence sur la densité des figures thermiques susceptibles d'apparaître au cours d'une trempe étagée avec Θ_M = 640°C, $\Delta\Theta$ = 620°C et à faible vitesse de refroidissement (5°C/Sec.).

Deux aluminiums de pureté différente ont été utilisés :

a) Cas de l'aluminium A-20

- Dans le cas de l'aluminium à 20.10^{-6} fer en poids, la mise en solution complète du fer est réalisée à une température d'environ 440°C (30), ce qui correspond à un abaissement de température de 640 - 440 = 200°C depuis le température Θ_M. Or, pour de faibles vitesses de refroidissement et avec Θ_M = 640°C, nous avons établi (cf.II-4-1-2) que la valeur de la chute de température ($\Delta\Theta$) nécessaire pour l'apparition des figures thermiques est d'environ 150°C. La différence entre la température d'apparition des figures thermiques et celle du début de précipitation du fer, montre que l'apparition des figures thermiques se produit avant que la précipitation du fer n'ait commencé. On peut noter que les figures thermiques obtenues ont un volume de l'ordre de 0,4 μ^3, et que leur densité est environ de 13.10^6 figures par cm^2 de surface. Le calcul donne alors une quantité de lacunes éliminées par cm^2 de surface comprise entre 1,6 et 3,1 x $10^{17}/cm^2$.

b) Cas de l'aluminium A-300

- Dans le cas de l'aluminium à 300.10^{-6} fer en poids, la mise en solution du fer est possible dès 615°C et la différence avec Θ_M n'est que de 25°C, cette différence est très inférieure à la valeur de $\Delta\Theta$ = 150°C nécessaire pour l'apparition des figures thermiques. Il en résulte que la formation des figures thermiques a lieu après le début de la précipitation du fer. La densité des figures thermiques alors obtenues a été d'environ 3.10^6 figures par cm^2 et leur volume de l'ordre de 1,6 à 3,2 μ^3.

On calcule ainsi une quantité de lacunes éliminées sous forme de figures égale à $2.x10^{17}$ par cm^2 de surface.

- L'effet de la présence du fer devient donc important si la concentration est élevée : la densité des figures thermiques formées par cm^2 est environ 4 fois plus faible sur A-300 que sur A-20 tandis que la quantité de lacunes éliminées sous forme de figures thermiques est presque la même. (figures 24 et 25).

II - 4 - 1 - 5 - Influence des traitements thermiques répétés

Pour mieux comprendre l'effet des traitements thermiques répétés sur la densité, la dimension et la distribution des figures thermiques, nous avons effectué une série de trois traitements successifs sur un même échantillon d'aluminium avec 300.10^{-6} fer. L'éprouvette est polie électrolytiquement entre chaque traitement

Les traitements réalisés ont été les suivants :

Tableau IX

Traitement	θ_M °C	θ_m °C	θ °C	Vitesse de refroidissement
1er	640°	20	620	5°. sec^{-1}
2ème	600°	20	580	5°. sec^{-1}
3ème	600°	20	580	5°. sec^{-1}

Les résultats obtenus amènent les remarques suivantes :

- les figures thermiques après chaque traitement présentent deux dimensions différentes (figures 26 et 27) et les plus petites matérialisent la limite du liséré exempt de figures thermiques existant à l'aplomb des joints et des sous-joints.

- quand les sous-joints sont séparés par une distance égale ou inférieure au double de la largeur du liséré, les cristaux ne présentent plus de figures thermiques,
- le tableau X qui indique les valeurs de la largeur des lisérés ainsi que les dimensions et la densité des figures thermiques obtenues, montre que la densité des figures thermiques par cm^2, observée après chaque traitement ainsi que la largeur des lisérés varient très peu d'un traitement à l'autre.

II - 4 - 1 - 6 - Influence de la nature et de l'épaisseur de la couche d'oxyde sur la formation des figures thermiques

Afin d'établir l'influence de la structure et de l'épaisseur de la couche d'oxyde sur la formation des figures thermiques, nous avons réalisé les traitements suivants :

a) Oxyde d'origine thermique

Les essais ont été effectués sur des échantillons d'aluminium A-20 et A-150 de 2 mm d'épaisseur préalablement polis électrolytiquement. Le recuit à θ_M entre 400° et 640°C dans ce cas a lieu dans l'air et les temps de séjour à θ_M ont varié de 5 minutes à 3 heures. Les résultats obtenus mettent en évidence les faits suivants :

- Pour $400° < \theta_M < 500°C$ la couche d'oxyde est toujours amorphe (38) et l'épaisseur peut varier en fonction de la température et du temps de séjour entre 50 (38) et 200 Å (40). La formation des figures thermiques n'a pas été observée du moins dans ces conditions quelle que soit la vitesse de refroidissement ou l'orientation des cristaux.

  Dans les échantillons traités à θ_M = 500°C on observe exceptionnellement la formation de figures au voisinage de certains joints de grains

- Pour 550° < θ_M < 640°C la couche d'oxyde formé est cristalline, transparente et d'épaisseur uniforme (38). Lorsque θ_M = 550°C, le temps de séjour minimum nécessaire pour observer après refroidissement des figures thermiques (de dimension et de distribution homogènes) a été d'environ 1/2 heure. Dans le cas où $\theta_M \geqslant$ 600°C, un séjour d'environ 10 minutes est suffisant et la densité et la dimension des figures thermiques formées ne sont pas affectées par la durée du traitement à θ_M si cette durée varie de 10 minutes à 3 heures (figure 28). Ces résultats montrent l'influence de la nature de la couche d'oxyde thermique sur la formation des figures thermiques. Seules les températures maximales θ_M supérieures à 550°C conduisant à la formation d'une couche d'oxyde cristalline permettent l'observation des figures thermiques après des traitements de trempe étagée.

b) Oxyde d'origine anodique

Les essais ont été réalisés sur des échantillons d'aluminium A-20 de 2mm d'épaisseur polis électrolytiquement. La couche d'oxyde anodique a été obtenue avec deux électrolytes différents :

- à base d'acide sulfurique (20% en poids) dans les conditions indiquées en I-3-2-1. Pour des temps d'anodisation assez courts (2 à 3 secondes) l'orientation des cristaux influe sur l'épaisseur et l'homogénéité de la couche d'oxyde dans les divers cristaux. La figure 29 montre bien l'effet de l'orientation des cristaux sur la densité des figures thermiques.
- à base de tartrate d'ammonium (cf.I-3-2-1). Ce mode d'oxydation qui conduit à des couches d'épaisseur plus homogène a permis la formation des figures thermiques quand θ_M est comprise entre 400 et 640°C avec des durées de séjour de 3 à 5 minutes à θ_M. Un résultat particulièrement important a été obtenu dans ces conditions à savoir la formation de figures thermiques au niveau des joints de grains, phénomène que l'oxyde thermique ne permet pas de révéler(41) (cf.IV).

II - 4- 1- 7- Influence des durées de séjour aux températures θ_M et θ_m sur la formation des figures thermiques

a) Influence de la durée à la température θ_M

- Quand on utilise des échantillons simplement polis sans couche d'oxyde anodique, la durée du séjour à la température θ_M nécessaire pour que des figures soient visibles après refroidissement, dépend de l'épaisseur de la couche d'oxyde thermique formée durant le séjour à θ_M. On sait en effet que la cinétique d'oxydation de l'aluminium à l'air varie en fonction de la température (42).

- Si le temps à θ_M est prolongé, l'effet du temps est donc négligeable, mais pour des temps plus courts, d'environ 5 mn à $\theta_M \geqslant 600°C$, l'influence de l'orientation des cristaux sur la densité des figures thermiques devient assez marquée (figure 30).

- Quand l'échantillon est auparavant oxydé anodiquement, un séjour de 2 à 5 minutes est suffisant pour sa mise en température ; on obtient cependant des figures thermiques après refroidissement, bien que le séjour à θ_M ait été très court. Des séjours de plus longue durée n'apportent aucune autre modification.

- Pour θ_M de l'ordre de 550°C, la durée du séjour nécessaire pour avoir une couche d'environ 200 Å d'épaisseur est de l'ordre de 1 heure.

- Pour $\theta_M > 600°C$, le temps est d'environ 1/2 heure,

b) Influence de la durée de séjour à la température θ_m

La durée su séjour a été comprise entre 1 et 180 mn et les résultats obtenus sont les suivants :

- Quand le milieu de trempe est l'air, (faible vitesse de refroidissement de l'ordre de 2 à 5°C/s.), si θ_M 550°C et si $\Delta\theta$ est supérieur à 150°C, le développement des figures thermiques n'est possible qu'à partir d'un temps de séjour d'environ 5 minutes

à la température θ_m. Des temps plus prolongés favorisent simplement le grossissement des figures thermiques, sans qu'il y ait accroissement du nombre des figures.

- Si le milieu de trempe est l'huile (V_R de l'ordre de 200°C/s), un séjour de 10 mn est suffisant pour observer la formation des figures thermiques : celles-ci sont en général de petites dimensions et ne se développent pas de façon très sensible si le temps de séjour à θ_m est prolongé au-delà de 10 minutes.

- Quand le milieu de trempe est un bain de sel ou d'étain (vitesse de refroidissement plus élevée : 800 à 1000°C/s) des séjours de une minute permettent le développement des figures thermiques. Si le temps de maintien à θ_m est plus prolongé (5 à 30 mn), on obtient des figures thermiques un peu plus grosses.

Figure 8 - Schéma de traitements de trempe étagée.

θ_M : température maximale atteinte par l'éprouvette.

θ_m : température du bain ou de l'atmosphère de trempe. Cette température, dite minimale, définit l'intervalle de températures $\theta_M - \theta_m = \Delta\theta$

t_c : temps de mise en température

t_M : temps de maintien à la température

t_R : temps de refroidissement entre θ_M et θ_m

t_m : temps de maintien à la température minimale.

Figure 9 - Schéma des fours superposés pour la réalisation des trempes étagées dans l'air chaud.

Figure 10- Nombre de lacunes disponibles par cm^3 dans l'aluminium en fonction de $\Delta\theta$ pour diverses températures θ_M.

Figure 11- Figures thermiques sur un cristal d'aluminium à 20 ppm de fer. θ_M = 640 °C, 1 h; θ_m = 400 °C, ½ h; V_R = 2 à 5 °C/sec. Echantillon oxydé thermiquement.

Figure 12- G. x 150 - Figures thermiques et gravage observés à l'interface métal-oxyde sur un aluminium à 150 ppm de fer. θ_M = 640 °C, 1 h; θ_m = 390 °C, 1 h; V_R = 2 à 5 °C/sec.

Figure 13- Fond noir. G. x 150. Echantillon ayant subi le même traitement thermique que celui de la figure 12.

Figure 14- Fond noir. G x 400 - Figures thermiques observées sur un cristal d'aluminium à 20 ppm de fer. θ_M = 640 °C, 1 h; θ_m = 390 °C, ½ h; V_R = 2 à 5 °C/sec.

Figure 15- Fond noir. G x 400 - Figures thermiques observées sur un aluminium à 150 ppm de fer ayant subi même traitement que celui correspondant à la figure 14.

Figure 16- <u>Aluminium A-20 ppm de fer épaisseur 2 mm.</u>

Variation du volume des figures thermiques formées sur chaque cm^2 de surface et variation de leur densité en fonction de $\Delta\theta$ pour θ_M échelonnée de 550 à 640 °C (vitesse de refroidissemente : environ 2 à 5 °C/sec.).

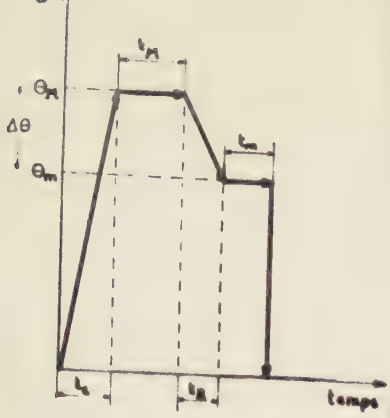


Fig.8

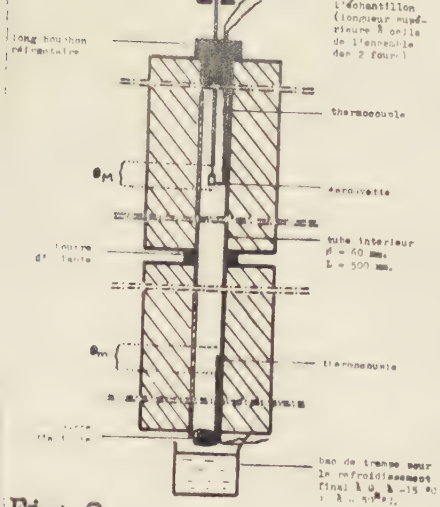


Fig.9

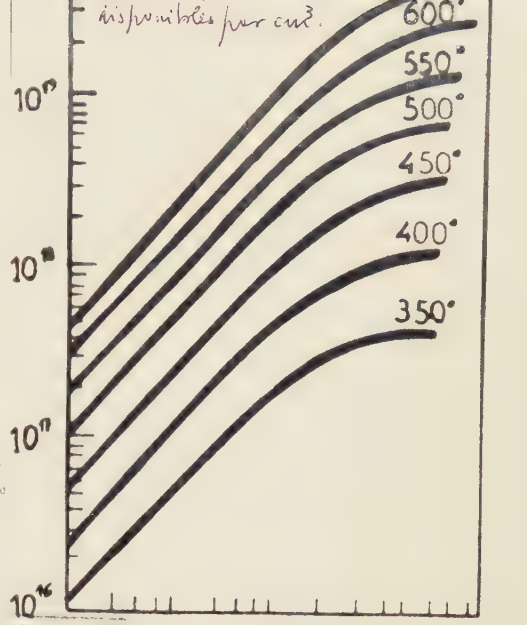


Fig.10

Fig.11

Fig.12

Fig.13

Fig.14

Fig.15

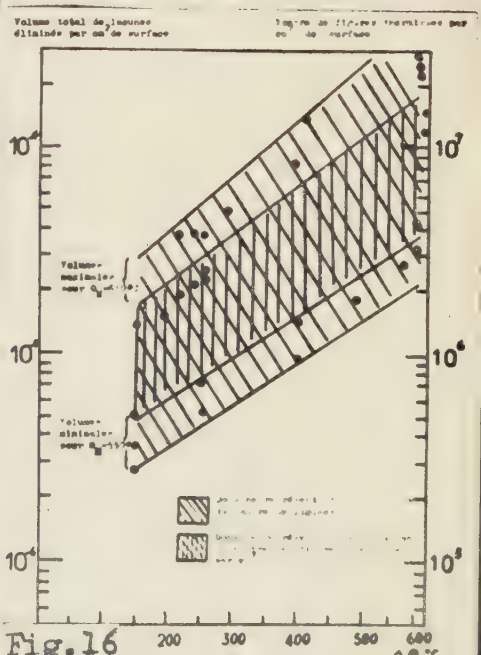


Fig.16

Figure 17 - Fond noir - G. x 150 - Figures thermiques obtenues lors d'un refroidissement à faible vitesse sur un aluminium à 150 ppm de fer.
θ_M = 630 °C, 1 h; θ_m = 390 °C, ½ h; V_R = 2 à 5 °C/sec.
On observe une région exempte de figures thermiques à proximité des joints de grains.

Figure 18 - G x 150 - Point triple entre 3 cristaux (J : joints de grains) Même échantillon et même traitement que pour la fig. 17.

Figure 19 - G x 150 - Figures thermiques obtenues pour une vitesse de refroidissement de l'ordre de 200 °C/sec., aluminium à 150 ppm de fer.
θ_M = 630 °C, 1 h; θ_m = 190 °C, ½ h; V_R = 200 °C,
J = joint de grains.

Figure 20 - Fond noir - G x 200 - Figures thermiques obtenues avec une vitesse de refroidissement de 1000 °C/sec. environ. θ_M = 640 °C, 1 h.; $\Delta\theta$ = 5 °C, 2 minutes.

Figure 21 - Fond noir - G x 100 - Figures thermiques obtenues avec la même vitesse de refroidissement que celle de la figure 20 avec θ_M = 640 °C, 1 h; $\Delta\theta$ = 50 °C, 3 minutes; J = joint de grains; SJ = sous-joints.

Figure 22 - Comparaison entre les densités des figures thermiques en fonction de $\Delta\theta$ pour deux vitesses de refroidissement entre θ_M et θ_m différentes.

Figure 23 - Fond noir - G x 25 - Aluminium à 20 ppm de fer (échantillon de 2 mm d'épaisseur). Figures thermiques obtenues pour une vitesse de refroidissement de l'ordre de 2 à 5 °C/sec.
θ_M = 640 °C, 1 h; θ_m = 300 °C, ½ h; V_R = 2 à 5 °C/sec.
SJ = sous-joints.

Figure 24 - G x 1500 - Aluminium à 20 ppm de fer - Figures thermiques observées sur un échantillon de 2 mm d'épaisseur pour une faible vitesse de réfroidissement (5 °C/sec)
θ_M = 640 °C, 1 h; $\Delta\theta$ = 620 °C.

Figure 25 - G x 1500 - Aluminium à 300 ppm de fer - Echantillon de 2 mm d'épaisseur, même traitement que l'échantillon de la figure 24.

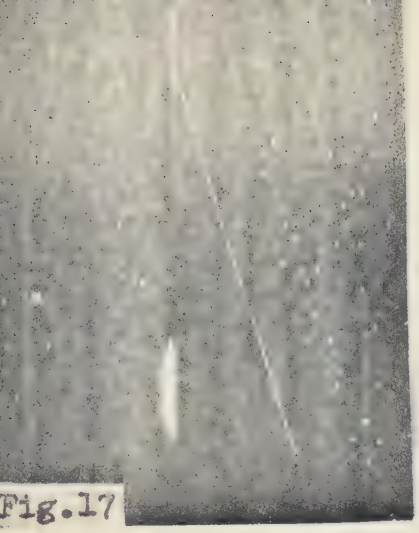


Fig.17

Fig.18

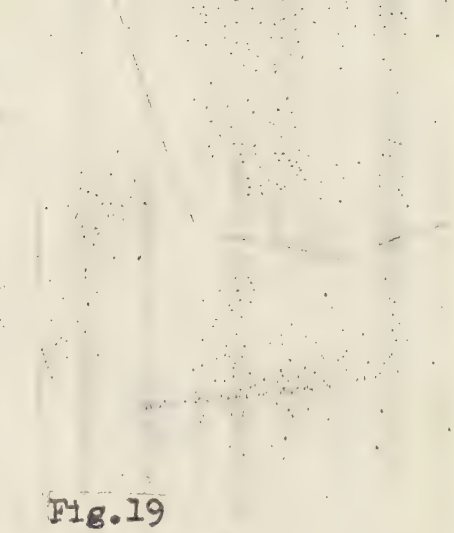


Fig.19

Fig.20

Fig.21

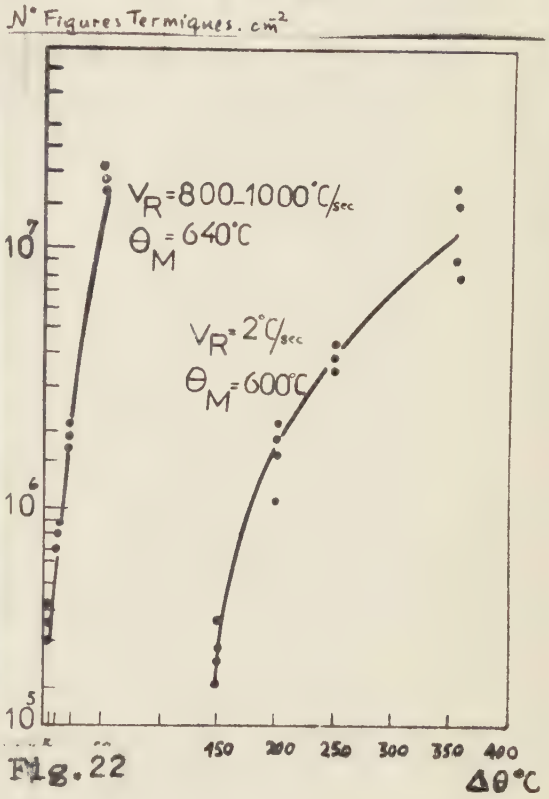


Fig.22

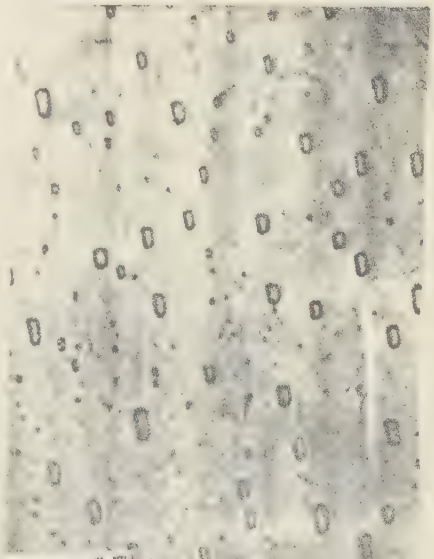


Figure 26 - G x 500 - Aluminium à 300 ppm de fer - Figures thermiques observées après un 2ème traitement thermique
θ_M = 600 °C, 1 h; θ_m = 20 °C; V_R = 5 °C/sec.

Figure 27 - G x 500 - Même échantillon que celui de la figure 26 après un 3eme traitement
θ_M = 600 °C, 1 h; θ_m = 20 °C; V_R = 5 °C/sec.

Figure 28 - G x 150 - Figures thermiques observées sur aluminum à 150 ppm de fer ayant 2 mm d'épaisseur
θ_M = 630 °C, 1 h ; θ_m = 400 °C, 2 h ; V_R = 2 à 5 °C/sec. Oxyde thermique.

Figure 29 - Fond noir - G x 150 - Figures thermiques observées sur un aluminium à 20 ppm de fer, oxydé anodiquement en bain sulfurique.
J : joints de grains de l'état initial
J' : position actuelle des joints.

Figure 30 - Fond noir - G x 150 - Aluminium à 200 ppm de fer (échantillon de 2 mm d'épaisseur)
Influence de l'orientation des cristaux sur la formation de figures thermiques.
θ_M = 620 °C, 5 minutes.
θ_m = 400 °C, ½ heures
V_R = 2 a 5 °C/sec.

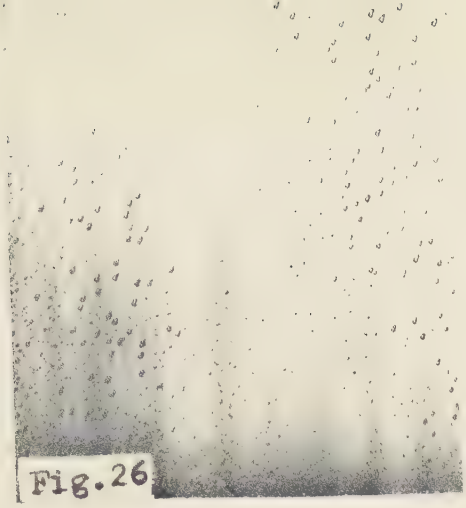


Fig.26

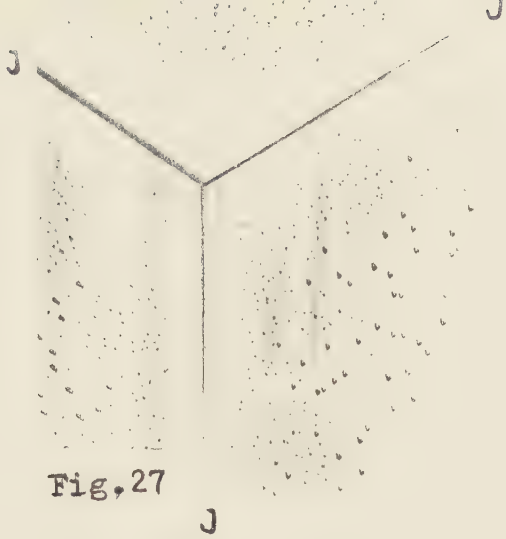


Fig.27

Fig.28

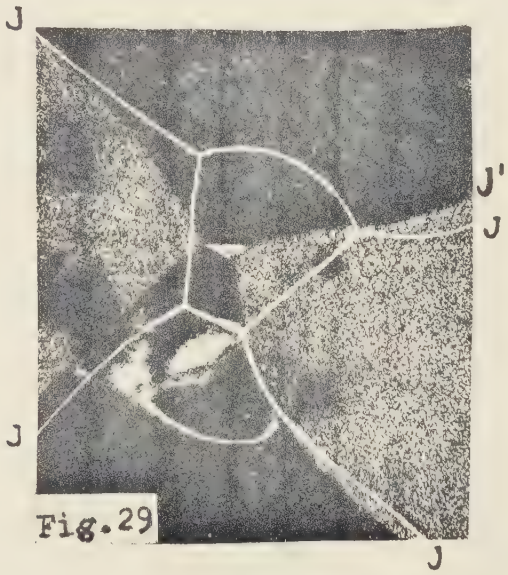


Fig.29

Fig.30

II - 5 - Discussion des résultats

II - 5 - 1 - Hypothèses sur l'origine des "figures thermiques"

L'on admet [8] généralement que les dislocations émergentes peuvent conduire les lacunes en certains points privilégiés de l'interface métal-oxyde.

Il faut par ailleurs, considérer que, dans un cristal parfait, les surfaces sont des sources et des puits de lacunes et que pour une température donnée, la concentration d'équilibre est atteinte même en surface. Par conséquent, lors d'une trempe étagée, à partir d'une certaine température θ_M et en raison de la chute de température ($\Delta\theta$) il y aura dans le cristal un certain nombre de lacunes en excès à la nouvelle température θ_m. L'importance de la "sursaturation" en lacunes est fonction non seulement de la valeur $\Delta\theta$, mais aussi de θ_M et de la vitesse de refroidissement.

Les surfaces libres étant des puits pour les lacunes, un gradient de concentration existe au voisinage de l'interface. Il y aura donc un flux de lacunes diffusant de l'intérieur des cristaux vers la surface : c'est le flux de matière inverse qui produit, à l'aplomb des dislocations émergentes et au niveau de l'interface métal-oxyde une dépression locale, c'est-à-dire une figure thermique.

II - 5 - 2 - Rôle du nombre de lacunes disponibles par cm^2 de surface d'échantillon pour former des figures thermiques

On a vu (figure 10) que la valeur de $\Delta\theta$ nécessaire pour avoir un nombre donné de lacunes en excès est d'autant plus importante que la température maximale θ_M est plus basse.

Mais le nombre ainsi déterminé n'est pas significatif de la quantité de lacunes effectivement utilisable pour former des figures thermiques. De nombreux facteurs tels que la vitesse de refroidissement, l'épaisseur de l'échantillon, la nature de la

Tableau XI

θ_M	θ_m	$\Delta\theta$°C	Temps séjour à θ_m	Vitesse de refroidissement °C/sec	Volume moyen d'une figure thermique en μ^3	Figures thermiques par cm^2	Nbre de lacunes éliminées par cm^2 de surface
600	450	150	1h	2°	17 μ^3 66 μ^3	$1,1 \times 10^5$	$4,5 \times 10^{17}$
600	200	400	1h	2°	1,3 μ^3 2,2 μ^3	51×10^5 57×10^5	$6,6 \times 10^{17}$ $4,5 \times 10^{17}$
640	635	5	1mn	1000°	0,43 μ^3	$0,3 \times 10^7$ $0,4 \times 10^7$	$0,78 \times 10^{17}$ $1,04 \times 10^{17}$
640	590	50	2mn	1000°	0,5 μ^3	$1,8 \times 10^7$ $2,2 \times 10^7$	$5,4 \times 10^{17}$ $6,6 \times 10^{17}$
640	395	245	5mn	2°	6 μ^3	$0,6 \times 10^6$ $2,3 \times 10^6$	$2,16 \times 10^{17}$ $8,28 \times 10^{17}$

couche d'oxyde, la pureté de l'aluminium doivent être pris en considération.

II - 5 - 3 - Rôle des tensions introduites par la trempe sur l'apparition des figures thermiques

Le choc thermique produit pendant la trempe étagée à moyenne et haute vitesse de refroidissement peut être à l'origine de contraintes thermiques.

Si nous admettons que le taux des contraintes résiduelles est d'autant plus faible que le milieu de trempe a une action de refroidissement moins énergique, on peut classer dans l'ordre croissant d'efficacité les milieux de trempe utilisés : air calm huile, bains de sel et bains d'étain. Mais il est aussi certain que les valeurs des contraintes résiduelles sont d'autant plus élevées que $\Delta\theta$ est plus grand. Les résultats obtenus avec une même valeur de θ_M dans le cas de la trempe à l'air et à l'étain, montrent une variation sensible du nombre des figures thermiques obtenues.

Les valeurs moyennes obtenues avec échantillons de 2 mm d'épaisseur pour diverses vitesses de refroidissement sont rassemblées dans le tableau XI.

Les remarques suivantes peuvent être faites :

a) Influence de $\Delta\theta$

- cas des vitesses de refroidissement faible

Lorsque la valeur $\Delta\theta$ est 2,6 fois plus grande ($\Delta\theta$ = 400°C au lieu de 150°C) la densité des figures thermiques par cm^2 devient 50 fois plus élevée (51×10^5 au lieu de $1,1 \times 10^5$ par cm^2).

- le nombre de lacunes éliminées sous forme de figures thermiques est sensiblement le même pour un nombre de lacunes disponibles presque identique ($42,10^{18}$ au lieu de 39.10^{18} par cm^3).

- cas des vitesses de refroidissement élevées
  - la densité de figures thermiques par cm^2 est d'environ 6 fois plus élevée ($0,4.10^7$ et $2,3.10^7$) lorsque la valeur $\Delta\theta$ est 10 fois plus grande ($\Delta\theta = 50°$ au lieu de 5°C)
  - le nombre de lacunes éliminées sous forme de figures thermiques est trouvé 9 fois plus grand alors que le nombre de lacunes disponibles par cm^3 est également de 9 fois plus élevée ($2,1.10^{18}$ au lieu de 18.10^{18}).

b) Influence de la vitesse de refroidissement

Lorsque la valeur de $\Delta\theta$ devient 5 fois plus faible ($\Delta\theta = 50°$ au lieu de 245°C) la densité des figures thermiques par cm^2 est environ 10 fois plus élevée lorsque la vitesse de refroidissement passe de 2°C à 1000°C ($2,2.10^7$ au lieu de $2,3.10^6$).

Ce dernier résultat indique une influence très nette de la vitesse de refroidissement sur la densité des figures thermiques, mais le nombre de lacunes éliminées par cm^2 de surface reste a peu près constant.

II - 5 - 4 - Rôle de l'épaisseur de l'échantillon

Les résultats obtenus ont montré une influence de l'épaisseur de l'échantillon sur la densité et la dimension des figures thermiques formées.

- Dans les échantillons de 2 mm d'épaisseur soumis à de faibles vitesses de refroidissement, nous avons estimé par le calcul que la profondeur minimale de métal participant à la formation des figures thermiques est de l'ordre de quelques dizaines de microns.
- Dans le cas des échantillons de 2/10 mm d'épaisseur, la profondeur du cristal qui participe à la formation des figures thermiques est seulement de l'ordre de 1 μ.
- Dans le cas des éprouvettes de 1/10 mm d'épaisseur refroidies au four à partir de $\theta_M = 640°C$ et avec un $\Delta\theta = 150°C$ et

$\Delta\theta$ = 300°C, nous n'avons pas observé de figures thermiques du moins au microscope optique.

II - 5 - 5 - Rôle des impuretés : effet du fer

L'utilisation d'aluminiums plus ou moins chargé en fer (20 et 300.10^{-6} fer) nous a montré que, lors des traitements de trempe étagée à faible vitesse de refroidissement (5°C/sec), la présence de cette impureté peut avoir une influence assez forte sur la densité et sur la dimension des figures thermiques (comparer les figures 24 et 25). Cet effet est lié, vraisemblablement, à la précipitation du fer le long des lignes de dislocations.

Quand la précipitation de fer au cours du refroidissement débute à une température supérieure à celle de l'apparition des figures thermiques, l'influence des précipités joue un rôle prépondérant sur la densité et la dimension des figures thermiques.

CHAPITRE III

FORMATION DES FIGURES THERMIQUES PAR TREMPE ETAGEE A LA SURFACE DES ALLIAGES Al-Cu A 4%

III - 1 - Les alliages utilisés

Dans le cas des alliages aluminium-cuivre l'étude de l'apparition et du développement des figures thermiques a été réalisée sur 2 types d'alliages aluminium-cuivre titrant 3.98 et 4.15 % de cuivre.

Le tableau XII indique les teneurs en impuretés dosées pour chacun des alliages utilisés, qui se distinguent essentiellement par leurs titres en cuivre et en fer.

Tableau XII

Alliages	Teneurs en éléments (%en poids)						
	Cu	Fe	Si	Mg	Ti	V	Zn
A-U4	4.15	0.01	0.004				
A-U4	3.98	0.0025	0.0010	0.0006	0.0030	0.0010	0.0010

III - 1 - 1 - Préparation des éprouvettes

L'élaboration des échantillons d'alliage aluminium-cuivre à gros grains a été effectuée selon la technique d'écrouissage critique (cf. § I-1-2-1 à I-1-2-2-3). Les éprouvettes ainsi préparées ayant une épaisseur de 2 mm ont subi les traitements suivants :

- Recuit (1/2 heure) à 560°C et refroidissement à l'air suivi de décapage,

- Ecrouissage critique par traction ou laminage comportant respectivement des déformations de 4,4 à 4,6 % et 2,0 à 2,5 %,
- Recuit à 470°C pendant 15 heures, puis montée lente de la température (environ 50°C/heure) jusqu'à 560°C,
- Séjour pendant 24 heures à cette dernière température et refroidissement à l'air.

La structure ainsi obtenue définit l'état initial des échantillons polycristallins de l'alliage aluminium-cuivre à 4% de cuivre, la taille moyenne des grains était de 1 à 2 cm^2.

III - 1 - 2 - Caractéristiques particulières des traitements de trempe étagée

Les éprouvettes étant recuites durant 24 heures à 560°C sont trempées à-15°C ou -50°C et polies à basse température. Elles sont ensuite soumises à des traitements de trempe étagée schématisée sur la figure 8.

Afin d'établir l'influence de divers facteurs susceptibles d'intervenir pour modifier les résultats, nous avons effectué plusieurs types de trempes étagées en faisant varier les valeurs des températures maximales θ_M et minimales θ_m. Le rôle du temps de séjour à θ_M ou θ_m et celui de la vitesse de refroidissement entre θ_M et θ_m ont également été envisagés.

Le tableau XIII indique dans le cas des alliages Al-Cu, les caractéristiques particulières des traitements réalisés.

Tableau XIII

- $500° < \theta_M < 560°C$
- $100° < \theta_m < 450°C$
- $150° < \theta < 450°C$
- Durée à θ_M : 1/2 heure à 2 heures
- Durée à θ_m : 30 secondes à 90 minutes
- Vitesse de chauffage : 2,5°C à 300°C/mn
- Vitesse de trempe : $\geqslant$ 150.000°C/mn à 120°C/mn

(31 à 34)

La réalisation pratique des essais de trempe étagée est analogue à celle décrite pour les échantillons d'aluminium (cf. II-3 et fig.8) et afin de "geler"la structure obtenue à la fin du séjour à la température θ_m; les éprouvettes ont été brutalement refroidies par immersion dans une saumure à base de Cl_2Ca portée à -50°C.

Insistons à nouveau sur le fait que dans les expériences réalisées avec les échantillons d'alliage aluminium-cuivre à 4% nous avons observé les mêmes précautions que pour l'aluminium (cf. II-3, remarques a et b) en ce qui concerne la préparation et les traitements thermiques des échantillons.

III - 2 - Résultats obtenus

Dans le but d'étudier le rôle que jouent les lacunes en ce qui concerne les phénomènes de précipitation dans l'alliage aluminium-cuivre à 4% de cuivre, nous avons réalisé un programme de trempe étagée, de façon à faire intervenir le nombre de lacunes disponibles entre les températures θ_M et θ_m, la température de précipitation de la phase Al_2Cu, la structure de la couche d'oxyde superficiel, et l'épaisseur de l'échantillon.

- Pour les traitements avec $\theta_M > 525°C$ nous avons utilisé des échantillons de 2 mm d'épaisseur. Pour $\Delta\theta$ compris entre 100° et 400°C la formation des figures thermiques est possible sur des cristaux oxydés thermiquement, mais elle n'est pas observée si $\Delta\theta$ est inférieur à 100°C. Comme dans le cas de l'aluminium, l'apparition des figures thermiques a lieu seulement au cours du refroidissement depuis la température θ_M.

- Pour les traitements à des températures θ_M comprises entre 450 et 525°C la couche d'oxyde thermique ne permet pas la formation des figures thermiques. Dans ce cas, l'oxydation anodique est indispensable pour observer des figures thermiques.

III - 2 - 1 - Rôle du nombre de lacunes disponibles entre les températures Θ_M et Θ_m sur la formation des figures thermiques

Comme dans le cas de l'aluminium pour des échantillons de 2 mm d'épaisseur et pour de faibles vitesses de refroidissement, l'apparition des figures thermiques dépend principalement de la température Θ_M et de $\Delta\,\Theta$, qui conditionnent la quantité de lacunes thermiques disponibles au cours du refroidissement. Cette valeur a été établie par différence entre le nombre de lacunes en équilibre thermique aux températures Θ_M et O_m

$$\Delta L = L_M - L'_m \text{ (par cm}^3 \text{ d'alliage) (5)}$$

L_M et L'_m ont été calculés à partir de la formule de LOMER (35) en supposant que les atomes de cuivre sont tous en solution solide à toutestempératures.

On a alors :

$$C_{eau} = A_1\ (1-12\ C) \times \exp\left(-\frac{E_F}{kT}\right) + A_2 . 12C \exp\left(-\frac{E_F - E_B}{kT}\right) \quad [4]$$

où

A_1 : facteur d'entropie

C : concentration atomique du soluté (0,015054 dans l'alliage aluminium-cuivre à 4% de cuivre en poids)

E_F : énergie de formation d'une lacune dans l'aluminium pur

A_2 : facteur d'entropie pour la formation d'une lacune à proximité d'un atome de cuivre

E_B : énergie de liaison "lacune-atome de soluté" évalué à 0,2 eV pour le cuivre (35)

Pour notre calcul, nous avons considéré que les facteurs d'entropie A_1 et A_2 sont respectivement égaux à exp (2,4) et 1 depuis les travaux de SIMMONS et BALLUFFI. (36)

En fait, il est plus réaliste de considérer une autre série de valeurs de L_M et L'_M correspondant aux concentrations en cuivre en solution solide à chaque température.

Les courbes des figures 31 et 32 montrent pour 9 températures θ_M différentes comprises entre 200° et 570°C, et pour chacune des hypothèses précédentes la quantité des lacunes disponibles pour des valeurs de $\Delta\theta$ comprises entre 1 et 540°C. Quand θ_M diminue, il faut augmenter $\Delta\theta$ pour obtenir une valeur donnée du nombre de lacunes disponibles pour la formation des figures thermiques.

De l'examen de ces courbes, on déduit que pour une valeur de $\Delta\theta$ donnée, le nombre de lacunes disponibles augmente avec la valeur de θ_M.

a) <u>Cas où la température maximale est > 525°C</u>

Les résultats obtenus sont indiqués dans le tableau XIV. Ces résultats mettent en évidence les faits suivants :

- les dimensions et la densité des figures thermiques par cm^2, pour une même vitesse de refroidissement varient avec $\Delta\theta$. Pour une température θ_M supérieure à 510°C, plus les figures sont d'autant plus petites et nombreuses, que $\Delta\theta$ est élevé. Cependant, il est clair que la vitesse de refroidissement et la durée de séjour à θ_m interviennent dans la taille et la nombre des figures,
- la densité et la dimension des figures varient très peu d'un cristal à l'autre,
- les figures ont des contours géométriques suivent arrondis (figure 33),
- quand la température de trempe θ_m est égale à 100°C environ et pour des vitesses de refroidissement de l'ordre de 200°C/sec

Tableau XIV

θ_M °C	θ_m °C	Durée à θ_m	$\Delta\theta$ °C	V_R °C/sec	Volume moyen d'une figure thermique en μ^3	Nombre de figures thermiques par cm^2	Nombre de lacunes disponibles par cm^3 d'après fig.31	Nombre de lacunes disponibles par cm^3 d'après fig.32	Nombre de lacunes éliminées par cm^2 de surface Valeur estimée
550	450	1/2h	100	2-5°C	$11\mu^3$	$0,1x10^6$ $0,2x10^6$	$4,2x10^{19}$	$4,6x10^{19}$	$1,10 \times 10^{17}$ $1,3 \times 10^{17}$
550	300	1/2h	250	2-5°C	$1\mu^3$	$3,8x10^6$ $5,7x10^6$	$4,2x10^{19}$	$5,5x10^{19}$	$2,1 \times 10^{17}$ $3,4 \times 10^{7}$
550	300	1/2h	250	1000°C	$0,5\mu^3$	$4,4x10^6$ $7,3x10^6$	$4,2x10^{19}$	$5,5x10^{19}$	$1,3 \times 10^{17}$ $2,2 \times 10^{17}$
550	100	1/2h	450	200°C	—	Pas F.T	$5,6x10^{19}$	$5,6x10^{19}$	
540(*) (10mn)	400	15mn	140	2-5°C	$8\mu^3$	$0,4x10^6$	$4,2x10^{19}$	$4,6x10^{19}$	2×10^{17}
510	300	1/2h	210	2-5°C	—	Pas F.T	$3,5x10^{19}$	$0,3x10^{19}$	
450(*)	300	1/2h	150	2-5°C	$0,03\mu^3$ $0,12\mu^3$	$2,7x10^6$	$1,6x10^{19}$	$0,9x10^{19}$	$4,8 \times 10^{15}$ $1,9 \times 10^{16}$
420(*)	200	2h	220	2-5°C	—	Pas F.T	$1,2x10^{19}$	$0,6x10^{19}$	

(*) Oxydé anodiquement

(trempe à l'huile) on ne perçoit aucune figure thermique. Ce phénomène est dû, vraisemblablement à la précipitation des lacunes sous forme de boucles

b) Cas où la température maximale est inférieure à 525°C

- Si la température θ_M est inférieure à 525°C (pour V_R = 2 à 5°C/sec et $\Delta\theta > 200$°C), la structure de la couche d'oxyde thermique empêche la formation des figures thermiques du moins dans les conditions de nos expériences.

- Dans le cas des traitements avec θ_M = 450°C, θ_m = 300°C et une vitesse de refroidissement V_R = 5°C/sec, la formation des figures thermiques n'est possible que si l'échantillon est oxydé anodiquement avant d'être porté à θ_M. On constate alors la présence d'environ 2,7 x 10^6 figures ayant un volume de 0,03 à 0,12 μ^3. Sur chaque cm^2 de surface, la quantité de lacunes éliminées sous forme de figures thermiques est ainsi de l'ordre de 4,8.10^{15} à 1,9.10^{16} lacunes par cm^2 de surface.

III - 2 - 2 - Influence de la vitesse de refroidissement

Afin d'établir l'influence de la vitesse de refroidissement sur le développement des figures thermiques, nous avons utilisé les milieux de trempe suivants : l'air, l'huile et le bain d'étain (cf.II-4-1-2). Pour des températures θ_M comprises entre 450° et 570°C, une variation de la vitesse de refroidissement entre θ_M et θ_m (de 2°C/sec à 1000°C/sec) amène une variation de la valeur minimale de $\Delta\theta$ permettant l'observation des figures thermiques. Plus V_R est élevée, plus $\Delta\theta$ est importante.

a) La vitesse de refroidissement est faible (2 à 5°C/sec).

L'apparition des figures a été observée si $\Delta\theta \geqslant 100$°C. La densité des figures thermiques, pour une même température θ_M peut varier de 1,8 x 10^5 à 5,7 x 10^6 figures par cm^2 selon

que $\Delta\theta$ est égal à 100°C ou 250°C. Dans ces conditions de refroidissement, le volume des figures varie également (depuis 11 μ^3 jusqu'à 1,3 μ^3). La micrographie (34) montre les figures thermiques obtenues pour de faibles vitesses de refroidissement.

b) <u>La vitesse de refroidissement est assez élevée (environ 200°C/sec) par trempe à l'huile.</u>

La température θ_m est comprise entre 100 et 180°C et l'apparition des figures thermiques n'a pas été observée. On peut donc penser que la précipitation des lacunes sous forme de boucles stables est toujours possible à ces températures θ_m pourtant relativement élevées

c) <u>La vitesse de refroidissement est élevée</u>

La trempe dans un bain d'étain (V_R = 1000°C/sec) nous a permis de mettre en évidence l'influence du choc thermique sur la densité et sur le volume des figures thermiques. On a trouvé pour θ_M = 550°C, $\Delta\theta$ = 250°C, et V_R = 5°C/sec, une densité de figures thermiques est de 3,8 à 4,3.10^6 figures pas cm^2 ; par contre, dans le cas de forte vitesse de refroidissement avec valeurs de θ_M = 550°C et $\Delta\theta$ = 250°C, le nombre de figures thermiques par cm^3 varie de 4,4 à 7,3.10^6. D'une façon générale, les figures thermiques sont de dimensions moyennes plus faibles si V_R est plus élevée : en d'autres termes, plus le choc thermique est important, plus les figures sont fines.

III - 2 - 3 - <u>Influence de l'épaisseur de l'échantillon</u>

Les résultats obtenus ont mis en évidence les faits suivants :

- la quantité de lacunes disponibles au cours du refroidissement entre θ_M et θ_m dépend de l'épaisseur de l'échantillon. Sur des échantillons de 2 mm d'épaisseur avec θ_M = 550°C et $\Delta\theta$ comprise entre 100 et 250°C (V_R = 2 à 5°C/sec) nous avons

trouvé de $1,8 \times 10^5$ à $7,3 \times 10^6$ figures thermiques par cm^2.

- les essais réalisés avec échantillons de 1/10 mm d'épaisseur (Θ_M = 550°C, $\Delta\Theta$ = 100 et 250°C, V_R = 2 à 5°C/sec) n'ont pas donné des figures thermiques.

III - 2 - 4 - Influence de la structure et de l'épaisseur de la couche d'oxyde

a) Oxyde d'origine thermique

Un phénomène important qui intéresse les couches d'oxyde formées sur les alliages A-U4 et la présence du cuivre dans la couche elle-même ( ). Ce phénomène concerne thermique obtenue aussi bien au-dessus que au-dessous de 525°C.

Les recuits ont été effectués à l'air avec Θ_M compris entre 450 et 570°C, les temps de recuits ont varié entre 30 minutes et 2 heures.

Les résultats obtenus mettent en évidence les faits suivants :

- Pour des températures $\Theta_M < 525°C$, la couche d'oxyde est amorphe, la formation des figures thermiques n'a pas été observée quel que soit le temps de maintien à Θ_M, la vitesse de refroidisement et l'orientation des cristaux.

- Pour des températures $\Theta_M > 525°C$, l'oxyde formé est cristallin, Si Θ_M 550°C le temps de maintien nécessaire pour observer des figures thermiques après refroidissement a été d'environ 1 heure. Dans le cas où le séjour à Θ_M est supérieur à 1 heure, on constate que la quantité de cuivre dans la couche d'oxyde devient plus importante.

b) Oxyde anodique

L'emploi de couches d'oxyde anodique obtenues avec l'électrolyte à base d'acide sulfurique dans les conditions indiquées au § I-3-2-1 a seul permis la formation des figures thermiques

pour des traitements à des températures θ_M comprises entre 450 et 570°C.

Les temps d'oxydation très courts (de 2 à 3 secondes ont donné des couches d'oxyde d'épaisseur équivalente à celui de l'oxyde thermique. Mais comme dans le cas de l'aluminium, l'orientation des cristaux a un effet remarquable sur l'épaisseur de l'oxyde anodique ce qui conduit à des différences notables dans le nombre et la dimension des figures thermiques. (figure 35)

III - 2 - 5 - Influence des durées de séjour aux températures θ_M et θ_m

a) Influence de la durée de maintien à la température θ_M

Les essais réalisés à partir d'échantillons non oxydés anodiquement ont montré que pour $\theta_M > 525°C$, la durée de séjour depuis 30 mn et 1 heure n'apporte par de modification à la densité et à la dimension des figures thermiques. Par contre des temps plus longs favorisent la ségrégation du cuivre dans la couche d'oxyde, phénomène qui peut expliquer la répartition hétérogène des figures thermiques à la surface d'un cristal donné (figure 36).

Dans le cas des échantillons oxydés anodiquement, nos essais ont été réalisés avec des séjours de 30 mn minimum et des temps plus prolongés n'ont pas provoqué de différences sensibles dans la densité et la taille des figures thermiques formées.

b) Influence de la durée de séjour à la température θ_m pour une même valeur de $\theta_M > 525°C$

Une durée de séjour comprise entre 30 secondes et 90 minutes donne les résultats suivants :

- Quand le milieu de trempe est l'air (V_R = 2 à 5°C/sec) si $\theta_M > 525°C$ et si $\Delta\theta \geqslant 100°C$ le développement des figures est possible à partir d'un temps de séjour inférieur à 5 minutes à la température θ_m. Des séjours plus prolongés favorisent

seulement le développement des figures thermiques.

- Si le milieu de trempe est l'huile (V_R = 200°C/sec) avec θ_m compris entre 100 et 190°C, les figures thermiques ne se développent pas.

- Quand le milieu de trempe est un bain de sel ou d'étain (V_R = 800 à 1000°C/sec respectivement) après un séjour de 30 sec à θ_m compris entre 300 et 450°C, on observe des figures thermiques. Sur des échantillons de 2 mm d'épaisseur, on trouve une densité d'environ 10^5 figures thermiques par cm^2, après 5 à 10 minutes à θ_m. Un temps de maintien à θ_m plus prolongé provoque un léger grossissement des figures thermiques.

Figure 31 - Nombre de lacunes disponibles par cm^3 en fonction de $\Delta\theta$, dans l'alliage A-U4 et pour diverses valeurs de θ_M °C (calculée avec la formule de LOMER où c est la concentration totale de cuivre présent dans l'alliage.

Figure 32 - Nombre de lacunes disponibles par cm^3 en fonction de $\Delta\theta$ dans l'alliage A-U4 et pour diverses valeurs de θ_M °C (calculée avec la formule de LOMER où c est la concentration du cuivre effectivement en solution à chaque température).

Figure 33 - G x 1000 - Figures thermiques observées sur des cristaux d'alliage A-U4.
θ_M = 540 °C, 1 h; θ_m = 400 °C, 1 h; V_R = 1000 °C/sec.
J : joint de grains. Les bâtonnets sont des précipités; les taches grises sur le fond sont des dendrites d'oxyde vraisemblablement chargées en cuivre.

Figure 34 - G x 1000 - Figures thermiques observées sur la surface d'un échantillon de l'alliage A-U4
θ_M = 570 °C, ½ h; θ_m = 450 °C, ½ h; V_R = 2 à 5 °C/sec.
J : joint de grains.

Figure 35 - Fond noir - x 150 - Alliage A-U4 oxydé anodiquement - Montre que la quantité de figures thermiques formées par unité de surface est différente sur chacun des cristaux.
θ_M = 550 °C, 1 h; θ_m = 300 °C, 1 h ; J : joints de grains.
Les bâtonnets blancs sont vraisemblablement des précipités dont la nature n'a pas été précisée.

Figure 36 - Lumiere polarisée - G x 300 - Alliage A-U4 oxydé thermiquement durant 1 h ½ .
θ_M = 540 °C, 1 h ½ ; θ_m = 300 °C, ½ h .
J : joint de grains de l'état initial
J' : joint de grains position actuelle
Les arborescences sont des dendrites contenant du cuivre formées dans la couche d'oxyde.

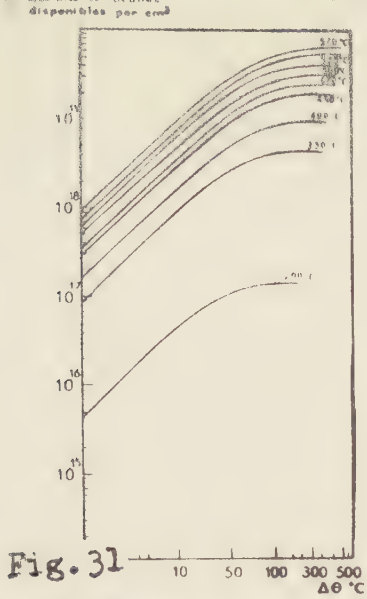


Fig. 31

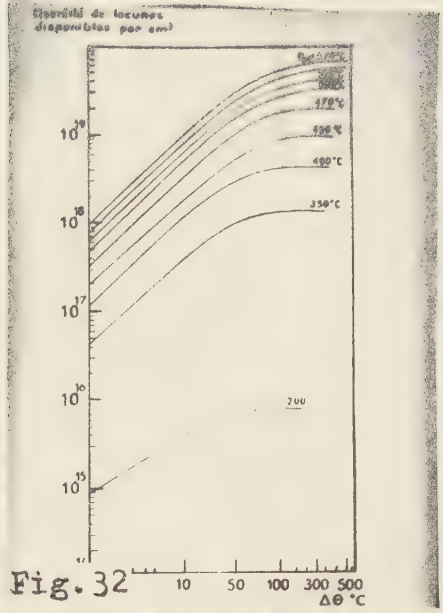


Fig. 32

J

Fig. 33

J

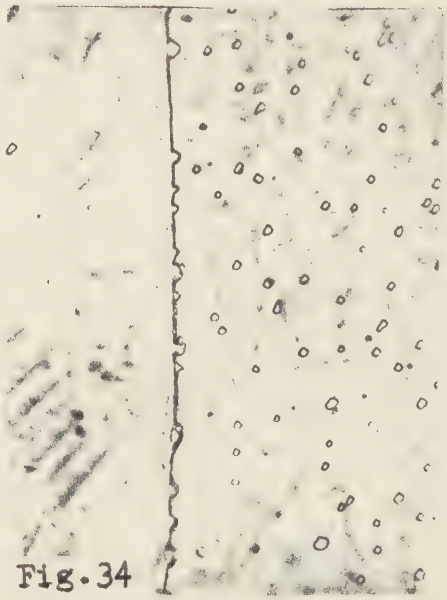


Fig. 34

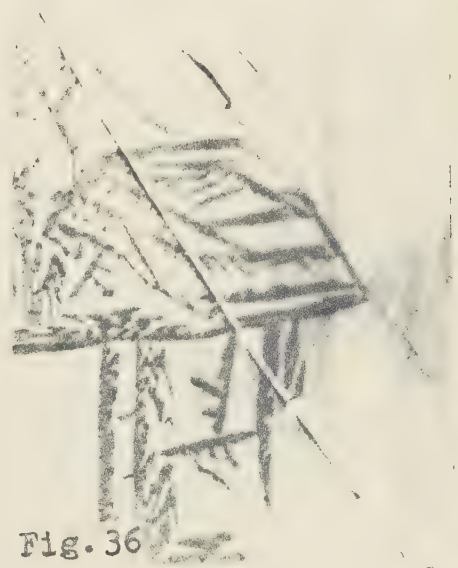
J

J

Fig. 35

J

J J'



J'

Fig. 36

J

CHAPITRE IV

ETUDE DE LA FORMATION DES FIGURES THERMIQUES AU COURS DE RECHAUFFAGES APRES TREMPE

- Cas de l'aluminium-

La formation des figures thermiques sur divers aluminiums raffinés réchauffés après trempe peut être interprétée comme étant due à l'élimination des lacunes gelées(41) et ce phénomène est étudié au moyen du microscope optique.

Nous préciserons donc certains facteurs essentiels capables d'affecter la cinétique de formation et de développement des figures thermiques sur l'aluminium au cours de son réchauffage après trempe.

IV - 1 - Métaux utilisés

Nous avons utilisé des échantillons d'aluminium de mêmes nuances que celles utilisées pour les essais précédents et titrant 20.10^{-6}, 150.10^{-6} et 300.10^{-6} de fer en poids.

IV - 2 - Traitements thermiques réalisés

Afin de rendre négligeable la sursaturation en lacunes thermiques, les éprouvettes sont initialement traitées à 640°C et refroidies jusqu'à 2[illegible] à la vitesse de 150°C/heure.

Les échantillons sont ensuite soumis à des traitements de trempe suivis de revenus tels que celui schématisé sur la figure 37. Les divers traitements ont été effectués de façon à mettre en évidence l'influence des facteurs suivants :

- les températures de trempe Θ_M et de réchauffage Θ_R,

- le temps de séjour à la température ambiante entre la trempe et le réchauffage,
- la durée du séjour à θ_R,
- la vitesse de réchauffage V_r,
- l'épaisseur de l'échantillon,
- la nature de la couche d'oxyde.

Le tableau XV rassemble les conditions expérimentales utilisées :

Tableau XV

- $400°C < \theta_M < 640°C$	
- $100°C < \theta_R < 640°C$	
- temps de maintien à θ_M :	5 mn pour les échantillons oxydés anodiquement, 1 heure pour les échantillons oxydés thermiquement
- temps de maintien à θ_R :	de 10 mn à 170 heures
- temps de séjour entre la trempe et le réchauffage :	de 30 secondes à 14 mois
- vitesse de trempe :	$> 2500°C/sec$
- vitesse de réchauffage :	de 15°C/mn à 300°C/mn

Il convient de préciser les détails opératoires importants ci-après :

- pour "geler" la structure obtenue à la température θ_M, les échantillons sont refroidis brutalement à -50°C par immersion dans une saumure de Cl_2Ca. Dans le cas des lames minces, la trempe est réalisée avec les précautions indiquées précédemment (cf. II.3),

- la vitesse de réchauffage la plus élevée a été obtenue par la mise en place des éprouvettes dans le four déjà porté à la température θ_R (V_r=300°C/minute) ou par introduction dans un bain d'huile pour les températures inférieures à 200°C,
- afin d'éviter la formation éventuelle de figures thermiques au cours du refroidissement final, les échantillons sont trempés à 0°C depuis la température θ_R.

Signalons enfin que l'utilisation d'une platine chauffante nous a permis de contrôler au microscope optique, la cinétique de formation des figures thermiques au cours même du réchauffage après trempe.

IV - 3 - Résultats obtenus

Les essais de trempe étagée ayant montré le rôle très important de la structure de l'oxyde thermique, nous distinguerons les 2 cas suivants :

a) Les traitements avec $\theta_M > 525°C$ permettent pour des températures de réchauffage θ_R supérieures à 100°C, mais inférieures à θ_M, et pour diverses vitesses de réchauffage, d'observer la formation des figures thermiques à la surface des cristaux. Ce phénomène n'est évidemment pas perceptible si l'échantillon ne contient pas une quantité suffisante de lacunes gelées.

b) Les traitements avec $\theta_M < 525°C$, la formation des figures thermiques pendant le réchauffage est presque nulle, quelles que soient θ_R et la vitesse de réchauffage, si l'échantillon est simplement oxydé thermiquement à la température θ_M. Seule l'utilisation d'une couche d'oxyde anodique permet d'observer la formation des figures thermiques à condition toutefois que la quantité de lacunes gelées par la trempe soit suffisante.

IV - 3 - 1 - Influence de la quantité de lacunes en excès à θ_R

La quantité de lacunes susceptibles de former des figures thermiques dépend de la température de trempe θ_M et de l'intervalle de température

$\Delta\theta = \theta_M - \theta_R$ (figure 38).

- plus θ_M est élevée et plus le nombre de lacunes thermiques gelées est important,
- plus la température θ_R est élevée ($\Delta\theta$ faible) et moins la quantité de lacunes en excès à θ_R est importante. Il est cependant nécessaire que θ_R soit supérieure à 80°C pour que les figures thermiques puissent se former.

Cette quantité de lacunes disponibles a été calculée par différence entre le nombre de lacunes en équilibre thermique aux températures θ_M et θ_R déterminée à partir de l'équation [1] . Les courbes de la figure 38 montrent pour 7 températures θ_M différentes, comprises entre 300 et 650°C, le nombre de lacunes en excès en fonction de $\Delta\theta = \theta_M - \theta_R$.

Ces courbes montrent que la seule valeur de $\Delta\theta$ n'est pas significative. Nous avons en effet obtenu les résultats suivants qui montrent que la quantité des figures thermiques peut être très différente pour un même $\Delta\theta$.

Tableau XVI

θ_M °C	θ_R °C	$\Delta\theta$ °C	Nombre de figures thermiques par cm^2
600	400	200	$1,6.10^7$ $2,3.10^7$
400	200	200	$0,15.10^7$

IV - 3 - 2 - Influence de la vitesse de réchauffage

IV - 3 - 2 - 1 - Cas de traitements à vitesse de réchauffage de l'ordre de 300°C/minute

IV - 3 - 2 - 1 - 1 - Pour $\theta_M \geqslant 525°C$

Le traitement de trempe initiale à partir de θ_M ne produit aucune

Tableau XVII

θ_M °C durée 1 h	Durée de séjour à 20°C avant réchauffage	θ_R °C	$\Delta\theta$ °C	Durée de séjour à θ_R	Vitesse de réchauffage °C/mn	Nombre de figures thermiques par cm^2	Volume moyen d'une figure thermique μ^3	Nombre calculé de lacunes en excès à θ_R par cm^3 figure 30	Nombre de lacunes éliminées par cm^2 de surface (Valeur calculée)
640	5 mn	190	450	15 mn	300°	$1,7 \times 10^7$ 2×10^7	$< 0,01\ \mu^3$ (*)	42×10^{18}	$1,5 \times 10^{18}$ $1,8 \times 10^{18}$
640	1/2 h	270	370	1 h	300°	$1,2 \times 10^7$ $1,5 \times 10^7$	$2\ \mu^3$	42×10^{18}	$1,4 \times 10^{18}$ $1,8 \times 10^{18}$
640	4 h	400	240	15 mn	300°	$2,1 \times 10^7$ $2,6 \times 10^7$	$1,6\ \mu^3$ $2,8\ \mu^3$	41×10^{18}	$1,9 \times 10^{18}$
640	1 h	500	140	10 mn	300°	$1,6 \times 10^7$ $2,1 \times 10^7$	$2,4\ \mu^3$	35×10^{18}	$2,4 \times 10^{18}$ $3,1 \times 10^{18}$
640	10 mn	640	0	15 mn	300°	Pas F.T.	—	0	—
600	1 h	400	200	15 mn	300°	$1,6 \times 10^7$ $2,3 \times 10^7$	$1,8\ \mu^3$	24×10^{18}	$1,7 \times 10^{18}$ $2,5 \times 10^{18}$
550	1/2 h	400	150	10 mn	300°	$1,1 \times 10^7$ $1,3 \times 10^7$	$1,7\ \mu^3$	13×10^{18}	$1,1 \times 10^{18}$ $1,3 \times 10^{18}$

(*) Début d'apparition des figures thermiques pour θ_R compris entre 80 et 20°C pour des temps de séjour jusqu'à 15 mn

figure thermique (figure 39).

La formation des figures thermiques pendant le réchauffage est alors possible si θ_R est inférieure à θ_M, mais supérieure à 80°C (comparer figures 39 et 40).

Les résultats obtenus sont indiqués dans le tableau XVII et ces résultats mettent en évidence les faits suivants :

a) la dimension des figures thermiques pour une valeur de θ_M donnée, et pour $\Delta\theta > 100$°C, est d'autant plus importante que la température θ_R est plus élevée (comparer les figures 41 et 42),

b) la densité des figures est pratiquement constante quels que soient θ_M et $\Delta\theta$, si θ_M est compris entre 640° et 550°C et si $\Delta\theta$ est supérieure à 100°C. (environ 10^7 figures thermiques par cm^2),

c) la forme des figures est à tendance géométrique mais les contours sont arrondis (figures 43 et 44),

d) la répartition des figures thermiques n'est pas quelconque, si l'oxyde est d'origine thermique,

- il n'y a aucun liséré appauvri à l'aplomb des joints (figure 45) et des sous-joints,
- au niveau des sous-joints (figure 46) et dans les zones balayées par les joints ayant migré au cours du traitement à la température θ_M, on trouve jusqu'à 10^9 figures thermiques par cm^2 environ (figure 47),
- on trouve également des figures en plus grand nombre à l'aplomb des bandes de glissement produites au moment de la trempe depuis θ_M (figure 48).

e) quand la température θ_R est égale ou supérieure à θ_M, aucune figure n'est observable après la trempe finale, lorsque l'échantillon est simplement oxydé thermiquement à θ_M. Mais si θ_M est de l'ordre de 640°C, il suffit que $\Delta\theta$ soit seulement

Table XVIII

θ_M °C	Durée de séjour à 20°C avant réchauffage	θ_R °C	$\Delta\theta$ °C	Durée de séjour à θ_R	Vitesse de réchauffage °C/mn	Nombre de figures thermiques par cm^2	Volume moyen d'une figure thermique μ^3	Nombre calculé de lacunes en excès à θ_R par cm^3 d'après fig.31	Nombre de lacunes éliminées par cm² de surface Valeur calculée
500	1/2 h	400	100	1/2 h	300°	Pas de figures thermiques	—	6×10^{18}	—
500	4 h	400 (✱)	100	1/2 h	300°	$0,7 \times 10^6$ $1,1 \times 10^6$	$0,6\ \mu^3$	6×10^{18}	$0,9 \times 10^{16}$ $2,5 \times 10^{16}$
450	$1\ ^{1/2}$ h	400	50	1/2 h	300°	Pas de figures thermiques	—	2×10^{18}	—
400 (✱)	1/2 h	400	0	1/2 h	300°	(✱✱✱)	$0,25\ \mu^3$ $1,1\ \mu^3$	—	—
400 (✱)	1/2 h	200 (✱✱)	200	1/2 h	> 300°	$2,8 \times 10^6$	$0,25\ \mu^3$	$1,3 \times 10^{18}$	$2,2 \times 10^{16}$

(✱) Oxydée anodiquement après trempe depuis θ_M.

(✱✱) Réchauffée par immersion de l'échantillon dans l'huile chaude.

(✱✱✱) Figures thermiques seulement à l'aplomb des joints de grains.

d'environ 3°C pour que des figures thermiques commencent à devenir visibles sur certaines bandes de glissement et sur des régions des cristaux localisées au voisinage de certains joints de grains (figures 49 et 50),

f) sur certains cristaux le nombre des figures thermiques peut être assez faible (figure 51). Ce phénomène est sans doute en relation avec l'épaisseur ou la structure de la couche d'oxyde thermique qui peut être affectée par l'orientation du cristal sous-jacent.

IV - 3 - 2 - 1 - 2 - Pour $\theta_M < 525°C$

Dans ce cas, on ne perçoit plus de figures après le réchauffage à θ_R quel que soit θ_R. On peut cependant se demander si l'oxyde thermique superficiel est encore capable de piéger les lacunes élim'n' (19) dans la mesure où cet oxyde est encore amorphe.

Si les échantillons sont oxydés anodiquement après la trempe depuis θ_M comprise entre 450 et 525°C, des réchauffages à θ_R comprises entre 400 et 500°C provoquent la formation de figures assez nombreuses (0,7 à 2,3.10^6 figures par cm^2 ; voir tableau XVIII).

Dans le cas où la température θ_M est comprise entre 400 et 450°C avec θ_R égal à 400°C, des microfigures thermiques se développent mais seulement près des joints de grains (figures 52 et 53).

IV - 3 - 2 - 2 - Cas des traitements avec une vitesse de réchauffage de 15°C par minute

L'utilisation d'une platine chauffante construite au Laboratoire par M. LEROY (43) a permis l'étude de l'apparition et du développement des figures thermiques. L'observation micrographique de l'échantillon en fond noir avec une couche d'oxyde cristallin, est alors effectuée en continu à la température même d'apparition du phénomène.

On peut ainsi contrôler la cinétique de formation des figures thermiques pour des vitesses de réchauffage comprises entre 15°C/mn et 40°C/mn.

Avec Θ_M=640°C, on observe sur la surface de plusieurs cristaux d'un échantillon d'aluminium A-20 de 2 mm d'épaisseur, le début de formation des figures thermiques dès 80°C environ (comparer les figures 54a et b). Au cours d'une montée ultérieure de la température, on constate les faits suivants :

- lorsque Θ_R atteint 100 à 110°C, le nombre de figures au niveau de certaines bandes de glissement augmente considérablement (figure54c),
- à la température Θ_R:150°C les figures déjà formées deviennent plus grandes,
- la formation de figures thermiques au niveau des sous-joints se produit à 200°C environ,
- à 220°C les figures thermiques mettent en évidence une grande quantité de bandes de glissement (figure54d)
- à Θ_R=270°C, les phénomènes précédents deviennent encore plus remarquables (accroissement de la taille des figures, augmentation de leur densité et mise en évidence des bandes de glissement (figure54e).

On remarque qu'il n'y a pas de liséré privé de figures thermiques à côté des joints de grains.

La comparaison des résultats obtenus avec les 2 vitesses de réchauffage (300°C/minute et 15°C/minute) montre que la vitesse de réchauffage ne modifie pas les phénomènes observés, tant en ce qui concerne la taille quela densité des figures thermiques ou leur répartition à la surface des cristaux.

θ_M °C	Durée de séjour à 20°C avant réchauffage	θ_R °C	$\Delta\theta$ °C	Durée de séjour à θ_R	Vitesse de réchauffage °C/mn	Nombre de figures thermiques par cm^2	Volume moyen d'une figure thermique μ^3	Nombre calculé de lacunes en excès à θ_R par cm^3 d'après fig.40	Nombre de lacunes éliminées par cm^2 de surface Valeur calculée
640	4 h	400	240	15 mn	300°	$2,1 \times 10^7$ $2,6 \times 10^7$	1,6 μ^3 2,8 μ^3	41×10^{18}	$1,9 \times 10^{18}$ $5,2 \times 10^{18}$
640	4 h	400	240	1/2 h	300°	$1,6 \times 10^7$ $1,8 \times 10^7$	2,1 μ^3	41×10^{18}	$1,4 \times 10^{18}$ $1,6 \times 10^{18}$
630	1/2 h	300	330	10 mn	300°	$0,3 \times 10^7$ $0,7 \times 10^7$	0,03 μ^3	38×10^{18}	$0,6 \times 10^{16}$ $1,3 \times 10^{16}$
640	1/2 h	300	340	3 h	300°	$0,9 \times 10^7$ $1,2 \times 10^7$	0,6 μ^3 0,9 μ^3	42×10^{18}	$3,2 \times 10^{17}$ $5,5 \times 10^{17}$
640	1/2 h	300	340	64 h	300°	$1,2 \times 10^7$ $1,7 \times 10^7$	2,5 μ^3	42×10^{18}	$1,8 \times 10^{18}$ $2,6 \times 10^{18}$
580	1 h	100	480	1 1/2 h	300°	fig.peu visibles difficulté de comptage	très petite	21×10^{18}	——
580	1 h	100	480	100 h	300°	fig.peu visibles difficulté de comptage	très petite	21×10^{18}	——
580	1 h	100	480	170 h	300°	$2,1 \times 10^7$ $2,2 \times 10^7$ (*)	0,12	21×10^{18}	$1,5 \times 10^{17}$ $1,6 \times 10^{17}$

(*) Valeur observée dans certains cristaux.

Tableau XX

θ_M °C	Durée de séjour à 20°C avant réchauffage	θ_R °C	$\Delta\theta$ °C	Durée de séjour à θ_R	Vitesse de réchauffage °C/mn	Nombre de figures thermiques par cm^2	Volume moyen d'une figure thermique μ^3	Nombre calculé de lacunes en excès à θ_R par cm^3 (fig. 2)	Nombre de lacunes éliminées par cm^2 de surface
640	4 h	400	240	15 mn	300°	$2,1 \times 10^7$ $2,6 \times 10^7$	1,6 1,8	41×10^{18}	$1,9 \times 10^{18}$ $5,2 \times 10^{18}$
614	3 mois	410	204	15 mn	300°	$2,8 \times 10^7$ $3,1 \times 10^7$	1,4	32×10^{18}	$2,4 \times 10^{18}$ $2,6 \times 10^{18}$
550	4 h	400	150	10 mn	300°	$1,1 \times 10^7$ $1,3 \times 10^7$	1,8	14×10^{18}	$1,1 \times 10^{18}$ $1,3 \times 10^{18}$
580	14 mois	400	180	10 mn	300°	$1,6 \times 10^7$ $1,8 \times 10^7$	1,6	20×10^{18}	$1,5 \times 10^{18}$ $1,6 \times 10^{18}$

IV - 3 - 3 - Influence de la durée de séjour à θ_R

IV - 3 - 3 - 1 - Pour des vitesses de réchauffage $\geqslant$ 300°C/minute

La durée du séjour à θ_R a une influence prépondérante sur la dimension des figures thermiques, notamment si θ_R est comprise entre 100 et 300°C. Les résultats obtenus sont rassemblés dans le tableau XIX qui amène aux remarques suivantes :

- pour θ_R compris entre 300 et 400°C, la variation de la dimension des figures thermiques et de leur densité pour des temps compris entre 15 minutes et 1/2 heure est peu appréciable (figures 55 et 56),
- quand θ_R est de l'ordre de 100°C, l'influence du temps de séjour devient prépondérante : il faut plus de 100 heures pour avoir des figures thermiques perceptibles au microscope optique. La densité obtenue est alors de 10^7 figures par cm^2.

IV - 3 - 3 - 2 - Pour des vitesses de réchauffage de l'ordre de 15°C par minute

Une montée lente en température jusqu'à θ_R=270°C suivi d'un séjour isotherme à cette température durant 1/2 heure permet d'observer un accroissement de la densité des figures thermiques (qui atteint 1,4.10^7 figures par cm^2) ainsi que de leur taille lorsque le temps de maintien à θ_R augmente (comparaison figures 57 et 58).

IV - 3 - 4 - Influence de la durée du séjour à 20°C avant le réchauffage à θ_R

Le temps de séjour à 20°C entre la trempe et le réchauffage est sans influence sur la densité et sur la dimension des figures thermiques : des figures thermiques ont pu être observées en grand nombre sur des échantillons réchauffés à 400°C après des séjours de 3 ou 14 mois à l'ambiante (figure 59).

Le tableau XX montre les résultats expérimentaux obtenus sur des échantillons en aluminium titrant 150.10^{-6} de fer et de 2 mm d'épaisseur, pour des temps de séjour à 20°C compris entre 4 heures et 14 mois.

Tableau XXI

Nature de la couche d'oxyde	θ_M °C	Durée de séjour à 20°C avant réchauffage	θ_R °C	$\Delta\theta$ °C	Durée de séjour à θ_R	Vitesse de réchauffage °C/mn	Nombre de figures thermiques par cm^2	Volume moyen d'une figure thermique μ^3	Nombre calculé de lacunes en excès à θ_R par cm^3 d'après fig. 2	Nombre de lacunes éliminées par cm^2 de surface
THERMIQUE	640°	4 h	400	240	15 mn	300°	$2,1 \times 10^7$ $2,6 \times 10^7$	$1,6^3$ $2,3^3$	41×10^{18}	$1,9 \times 10^{18}$ $5,2 \times 10^{18}$
(*) ANODIQUE	640°	4 h	400	240	1/2 h	300°	$1,6 \times 10^7$ $1,8 \times 10^7$	$1,5^3$	41×10^{18}	$1,4 \times 10^{18}$ $1,6 \times 10^{18}$

(*) Oxydée anodiquement avec solution de tartrate d'ammonium.

IV - 3 - 5 - Influence de la nature de la couche d'oxyde

L'utilisation de couches d'oxyde thermique ou anodique nous a permis de contrôler l'influence de la structure et de l'épaisseur de la couche d'oxyde sur la formation des figures thermiques.

Les essais réalisés (voir tableau XXI) montrent que si Θ_M est supérieur à 525°C, l'oxyde thermique ou l'oxyde anodique conduisent aux mêmes résultats, tant en ce qui concerne la densité que la taille des figures thermiques. Les essais comparatifs avec $\Theta_M < 525°C$ n'ont pu être entrepris puisque l'oxyde thermique formé à basse température ne permet pas la formation des figures thermiques. Seul l'oxyde anodique est alors anodique.

Cas particulier de l'oxyde anodique

Deux électrolytes différents ont été utilisés :

a) à base d'acide sulfurique (cf.I-3-2-1) : pour des temps d'oxydation assez courts, l'orientation des cristaux a une forte influence sur la cinétique d'oxydation et sur l'épaisseur de la couche d'oxyde. La figure 60 montre les résultats obtenus sur un échantillon d'aluminium A-20 oxydé pendant 2 secondes.

b) à base de tartrate d'ammonium (cf.I-3-2-1) : avec cet électrolyte, les couches d'oxyde obtenues sont très homogènes dans le sens où l'orientation des cristaux sous-jacents affecte peu leur épaisseur. Avec Θ_M supérieur à 525°C, l'oxyde anodique se comporte comme l'oxyde thermique en ce qui concerne la densité des microfigures développées au cours d'un réchauffage ultérieur. On observe cependant une accumulation très nette de figures sur les joints de grains et sur les sous-joints, ce que l'oxyde thermique ne permettait pas de montrer aussi nettement. Comparer figures 61 et 62.

Tableau XXII

Epaisseur mm	θ_M °C	Durée de séjour à 20°C avant réchauffage	θ_R °C	$\Delta\theta$ °C	Durée de séjour à θ_R	Vitesse de réchauffage °C/mn	Nombre de figures thermiques par cm^2	Volume moyen d'une figure thermique μ^3	Nombre calculé de lacunes en excès à θ_R par cm^3 (fig. 2)	Nombre de lacunes éliminées par cm^2 de surface
3/100	640°	1 h	(*) 400°	240	1/2h	300°	$0,4 \times 10^7$ $0,5 \times 10^7$	0,018 μ^3 (*)	41×10^{18}	$4,4 \times 10^{12}$ $5,4 \times 10^{14}$
2	640°	4 h	(**) 400°	240	1/2h	300°	$1,6 \times 10^7$ $1,0 \times 10^7$	1,5 μ^3	41×10^{18}	$1,4 \times 10^{18}$ $1,6 \times 10^{18}$

(*) Valeur déterminée par M.E.

(**) Oxydée anodiquement.

Figure 37 - Schéma de traitements de trempe et réchauffage

θ_M : température maximale atteinte par l'éprouvette

θ_R : température de réchauffage

θ_m : température de trempe comprise entre -60 °C et 20 °C

t_c : temps de mise en température

t_M : temps de maintien à la température θ_M

t_s : temps de séjour après trempe (températures comprises entre -60 °C et 20 °C)

t_r : temps de réchauffage compris entre 30 sec et 14 mois

t_R : temps de maintien à la température de revenu θ_R

Figure 38 - Nombre de lacunes en excès par cm^3 dans l'aluminium en fonction de $\Delta\theta = \theta_M - \theta_R$ pour diverses températures θ_M.

Figure 39 - Fond noir - G x 150 - Aluminium à 150 ppm de fer après une trempe à -15 °C depuis θ_M = 640 °C (echantillon de 2 mm d'épaisseur). Montre l'absence de fires thermiques. J : joints de grains de l'état initial J' :joints de grains position actuelle.

Figure 40 - Fond noir - G x 150. Meme échantillon que celui de la figure 39 après réchauffage à 410 °C pendant 15 min. J : Joints de grains de l'état initial; J' : Joints de grains position actuelle.

Figure 41 - G x 800 - Aluminium à 20 ppm de fer - Figures thermiques obtenues par réchauffage après une trempe. θ_R=400 °C

Figure 42 - G x 800 - Aluminium à 20 ppm de fer - Figures thermiques obtenues par réchauffage après une trempe.
θ_M = 640 °C, 1 h ; θ_R = 500 °C, 10 mn ; V_r = 300 °C/mn.

Figure 43 - G x 1500 - Aluminium à 150 ppm de fer - Figures thermiques formées au réchauffage sur un cristal d'une certaine orientation.
θ_M = 640 °C, 1 h; θ_R = 412 °C, ½ h; V_r = 300 °C/sec.
(Comparer à la figure 14)

Figure 44 - G x 1500 - Aluminium à 150 ppm de fer. Même échantillon que celui de la figure 43, les figures sont observées sur un cristal ayant une autre orientation.

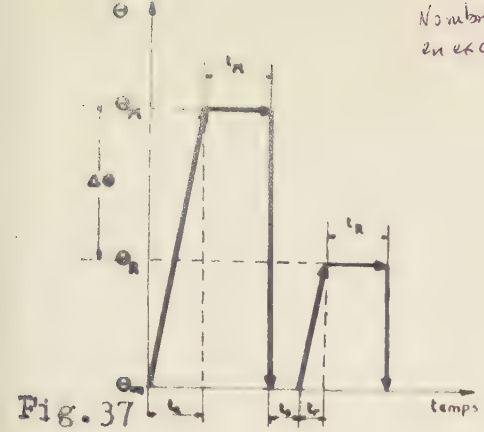


Fig. 37

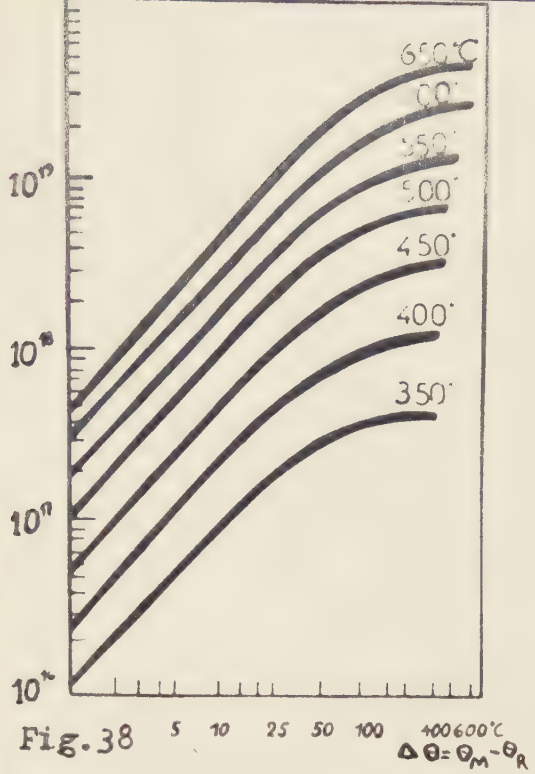


Fig. 38

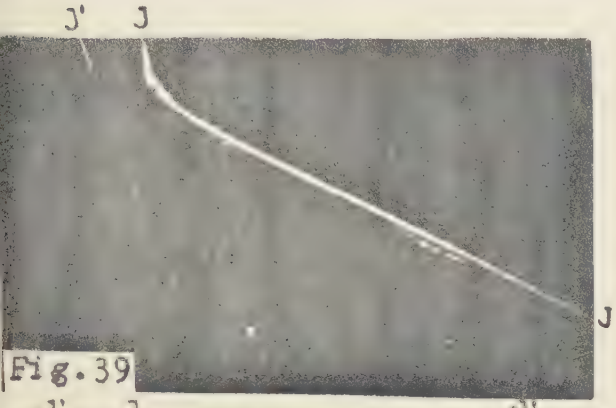


Fig. 39

Fig. 40

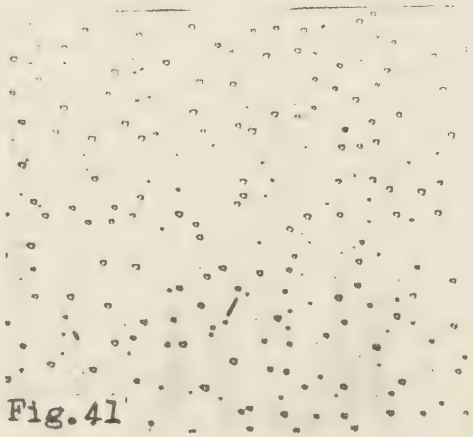


Fig. 41

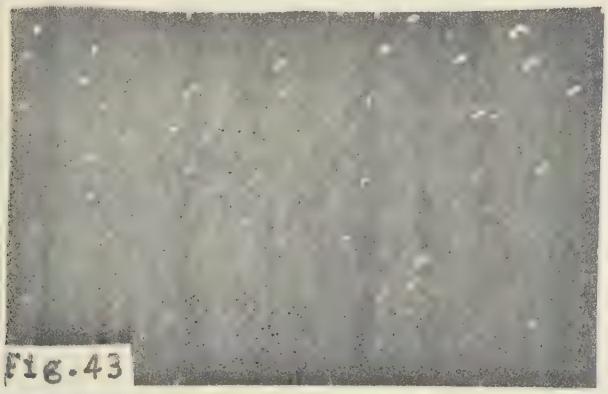
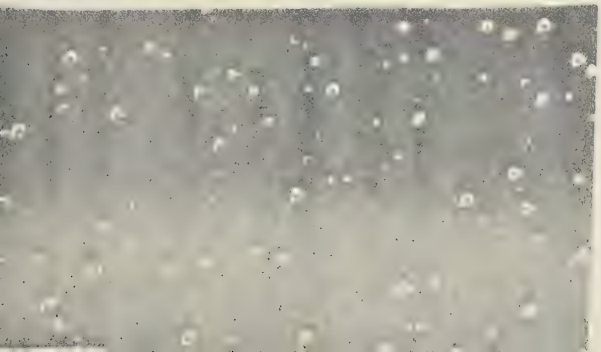


Fig. 43



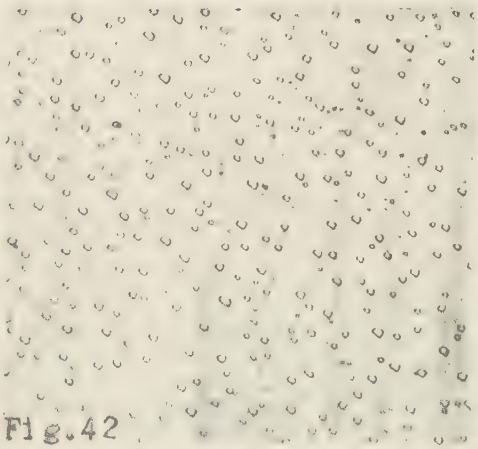


Fig. 42

Figure 45 - G x 600 - Aluminium à 150 ppm de fer - Répartition des figures thermiques à l'aplomb d'un joint de grains J.
θ_M = 640 °C, 1 h; θ_R = 400 °C, 15 mn; V_r = 300 °C/mn.

Figure 46 - G x 600 - Aluminium à 150 ppm de fer - Sous-joints marqués par des figures thermiques après un traitement de trempe suivi d'un réchauffage.
θ_M = 640 °C, 1 h; θ_R = 400 °C, 15 mn.; V_r = 300 °C/mn.

Figure 47 - Fond noir - G x 150 - Aluminium à 150 ppm de fer - Accroissement de la densité des figures thermiques dans les zones balayées par les joints migrant au cours du traitement à θ_M.
θ_M = 614 °C, 1 h; θ_R = 410 °C, 15 mn; V_r = 300 °C/mn
J : joints de grains de l'état initial
J': joints de grains position actuelle
Les bandes claires sont en correspondance avec des bandes de glissement.

Figure 48 - Fond noir - G x 150 - Aluminium à 150 ppm de fer - Variation du nombre des figures thermiques à l'aplomb des bandes de glissement B, B', B"... produites au moment de la tempre depuis θ_M
θ_M = 640 °C, 1 h; θ_R = 400 °C, 14 mn; V_r = 300 °C/mn.
J : joint de grains.

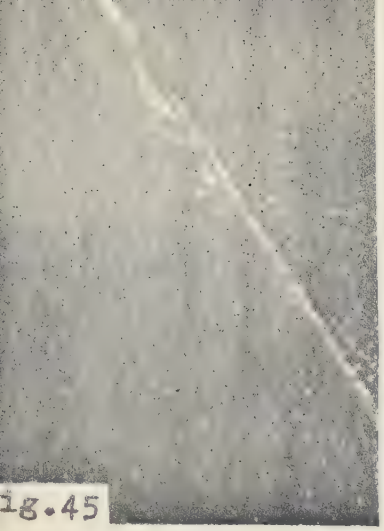
Figure 49 - Fond noir - G x 75 - Aluminium à 20 ppm de fer - Petit nombre de figures thermiques observées pour $\Delta\theta$ = 3 °C.
θ_M = 640 °C, 1 h; θ_R = 637 °C, 10 mn; V_R : 300 °C/mn.

Figure 50 - Fond noir - G x 75 - Même échantillon que celui de la figure 49 (point triple) - J : joints de grains.

Figure 51 - G x 500 - Aluminium à 150 ppm de fer - Figures thermiques peu nombreuses sur un cristal d'orientation particuliaire .
θ_M = 630 °C, 1 h; θ_R = 400 °C, 15 mn; V_r = 300 °C/mn.

Figure 52 - G x 1000 - Aluminium à 20 ppm de fer - Figures thermiq ues au voisinage d'un joint de grains JJ visibles grâce à l'oxyde anodique.
θ_M = 400 °C, 1 h; θ_R = 400 °C, ½ h, ; V_r = 300 °C/mn

Figure 53 - G x 1000 - Meme échantillon que celui de la figure 52 (point triple).
J , J', J" : joints de grains



ig.45

Fig.46

Fig.47

ig.48

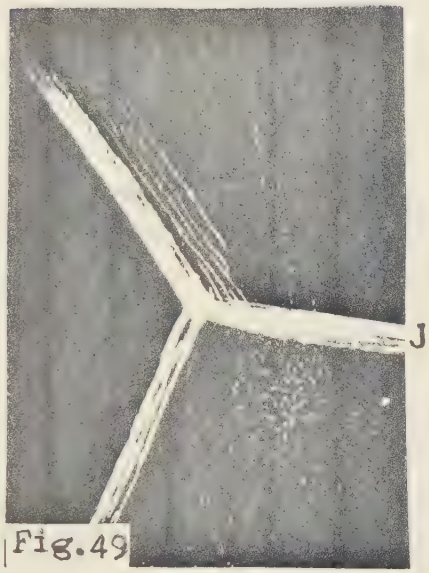
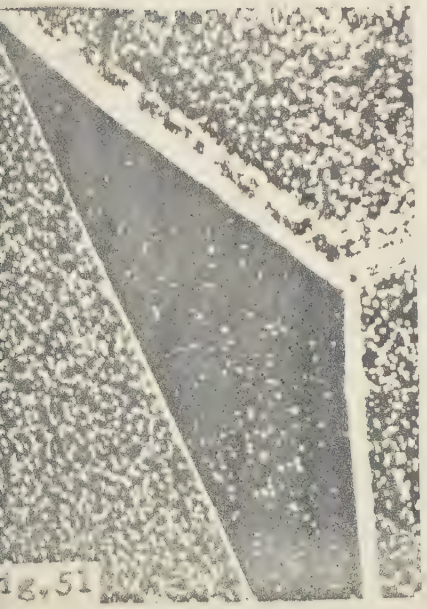


Fig.49

Fig.50

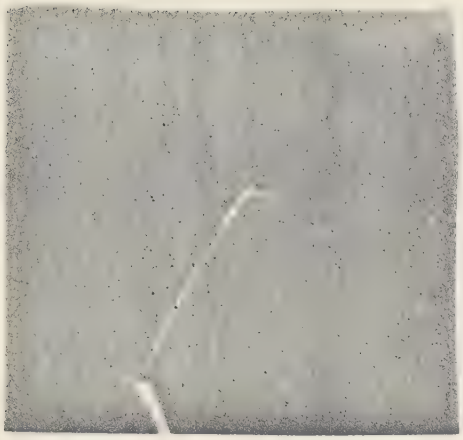


ig.51

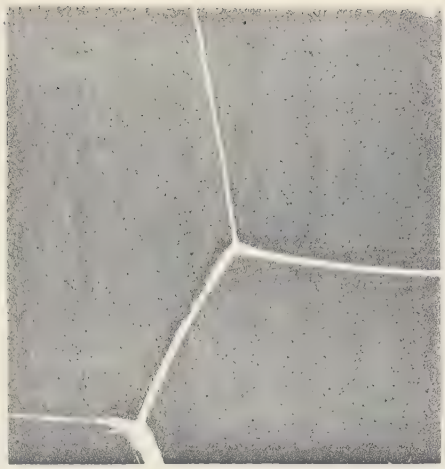
Fig.52

Fig.53

itial
remse
°C



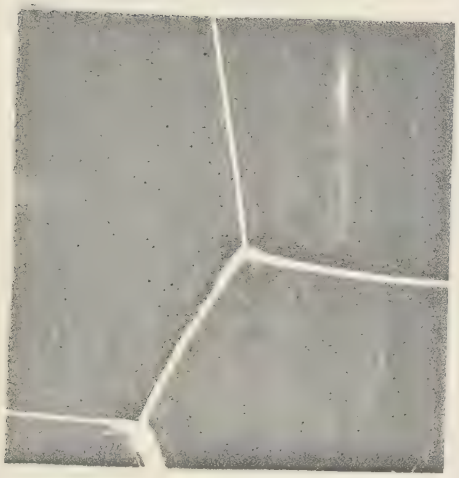
a X 75



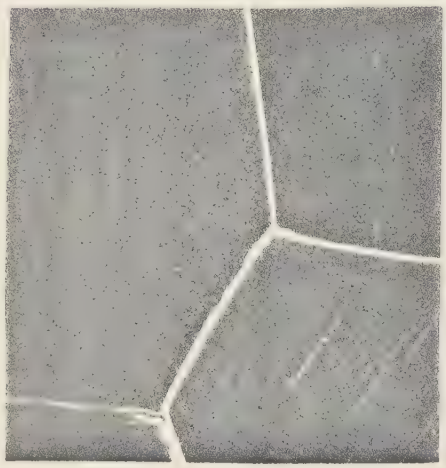
Θ_R : 80°C

b X 75

°C

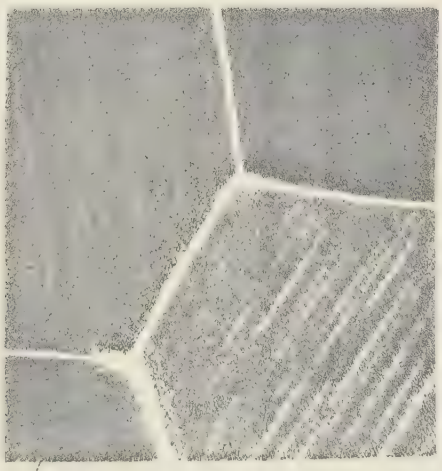


c X 75



Θ_R :220 °C

d X 75



Θ_R :270°C

e X 75

igure 54 - Fond noir
luminium à 20 ppm de fer
échauffé à 15 °C/minute
près trempe à 0°C depuis
40 °C
spects successifs à divers
[illegible]

Figure 55 - G x 800 - Aluminium à 20 ppm de fer - Figures thermiques observées apres un réchauffage à θ_R = 400 °C pendant 15 minutes
θ_M = 600 °C, 1 h; V_r = 300 °C/sec.

Figure 56 - G x 800 - Aluminium à 20 ppm de fer - Figures thermiques observées en réchauffage à θ_R = 400 °C pendant 1/2 h

Figure 57 - Fond noir - G x 75 - Aluminium à 20 ppm de fer (échantillon de 2 mm d'épaisseur). Figures thermiques observées durant un réchauffage à θ_R = 260 °C (V_r 15 °C/mm) après trempe depuis θ_M = 640 °C (1 h).

Figure 58 - Fond noir - G x 75 - Même plage que celle de la figure 57 après un séjour de ½ heure à la température θ_R = 270°C

Figure 59 - G x 800 - Aluminium à 20 ppm de fer (échantillon de 2 mm d'épaisseur) - Figures thermiques obtenues par réchauffage à θ_R = 400 °C après un séjour de 3 mois à 20 °C entre la trempe et le réchauffage.
θ_M = 600 °C, 1 h; θ_R = 400 °C, ½ h; V_r = 300 °C/sec.

Figure 60 - Fond noir - G x 75 - Aluminium à 20 ppm de fer. Influence de la cinétique d'oxydation anodique (électrolyte à base d'acide sulfurique) sur l'épaisseur de la couche d'oxyde. Les figures thermiques ce sont formées seulement sur le cristal ayant une couche d'oxyde d'épaisseur suffisante.
θ_M = 640 °C, 1 h; θ_R = 400 °C, 15 mn; V_r = 300 °C/sec.

Figure 61 - Fond noir - G x 100 - Aluminium à 20 ppm de fer(échantillon de 2 mm d'épaisseur). Mise en évidence des joints et des sous-joints de grains par accumulation de figures thermiques au cours du réchauffage. Oxyde anodique.
θ_M = 640 °C, 1 h; θ_R = 400 °C, ½ h; V_r = 300 °C/mn.
SJ: sous-joints
JJ: Joints de grains

Figure 62 - G x 200 - Aluminium à 20 ppm de fer (échantillon de 2 mm d'épaisseur). Mise en évidence des joints de grains et des sous-joints de grains sur un échantillon soumis au même traitement que celui de la figure 61 - Oxyde thermique. JJ : Joint de grains. SJ : sous-joints.

Figure 63 - G x 10 000 - Aluminium à 150 ppm de fer - Figures thermiques obtenues sur un échantillon de 3/100 mm d'épaisseur. Micrographie électronique.

Fig.55

Fig.56

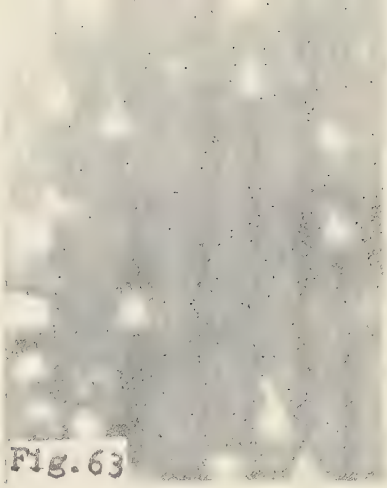


Fig.63

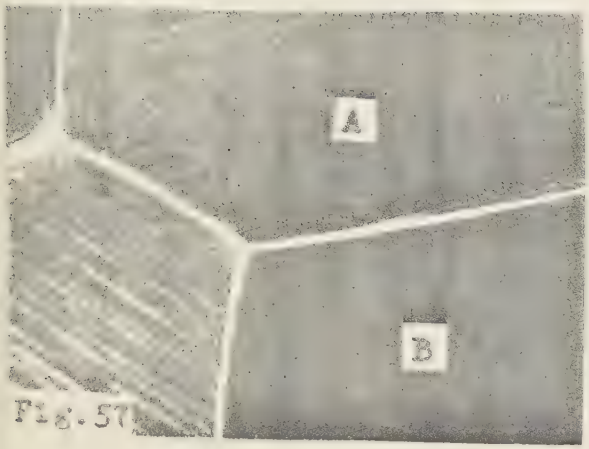


Fig.57

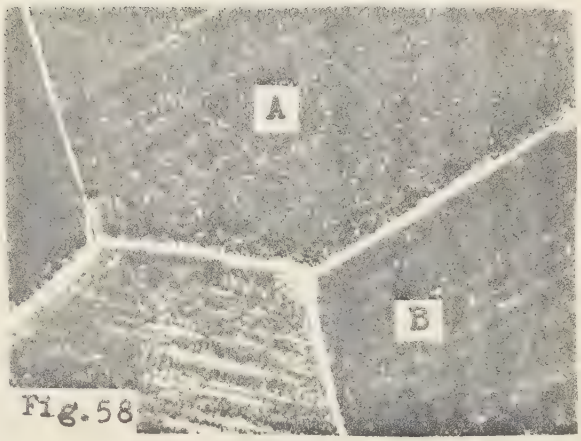


Fig.58

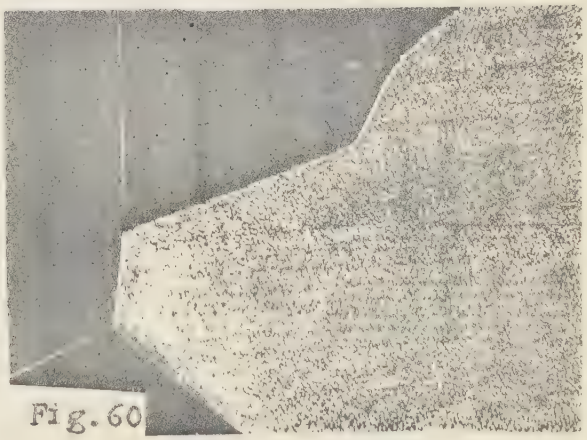
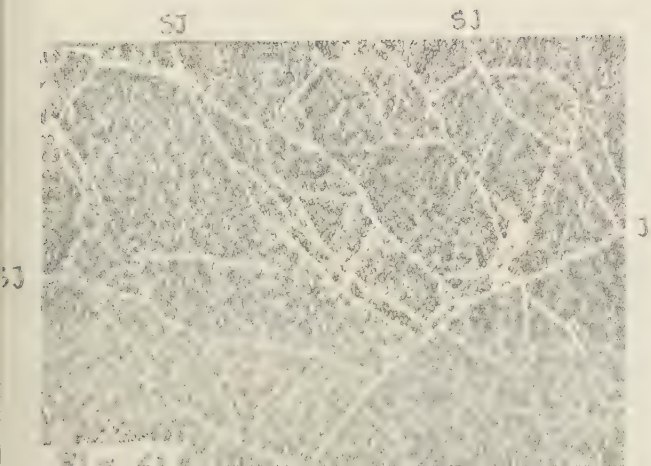


Fig.60

Fig.59



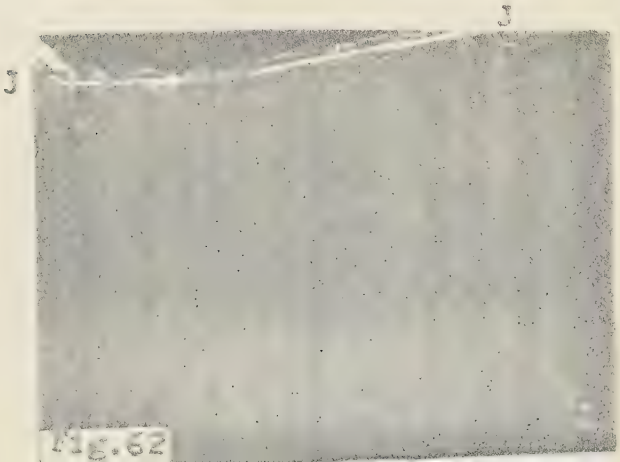


Fig.62

CHAPITRE V

FORMATION DES FIGURES THERMIQUES AU COURS DE RECHAUFFAGE APRES TREMPE A LA SURFACE DES ALLIAGES Al-Cu A 4%

V - 1 - Alliage utilisé

L'étude de la formation des figures thermiques par réchauffage a été réalisée sur un alliage A-U4 titrant en atomes $1,5.10^{-2}$ de cuivre, 12.10^{-6} de fer et 10.10^{-6} de silicium. Les autres impuretés sont en faible quantité (Mg : 7.10^{-6}, Ti : 50.10^{-6}, V : 20.10^{-6}, Zn : 4.10^{-6}).

V - 2 - Traitements thermiques réalisés

Un recuit initial de 24 heures à 560°C suivi de trempe à -15° ou -50°C permet d'obtenir des échantillons d'alliage A-U4 où le cuivre est en solution solide sursaturée. Un polissage à basse température évite alors tout phénomène de précipitation (cf. I-2-1) et, dans ces conditions structurales de l'alliage, le polissage électrolytique est réalisé très facilement.

Les éprouvettes sont ensuite soumises à des traitements de trempe suivie de réchauffage schématisées sur la figure 37 . Il faut noter que la mise en température à Θ_M ne produit pas de figures thermiques au cours du réchauffage puisque les échantillons fraîchement polis sont privés de couche d'oxyde initiale et que la vitesse de montée en température est supérieure à 300°C par minute (cf. IV-3-2-1-1).

Les traitements adoptés ont permis de montrer l'influence des facteurs suivants :

- températures de trempe θ_M et de réchauffage θ_R,
- vitesse de réchauffage (V_r),
- origine de la couche d'oxyde.

Dans le tableau XXII figurent les conditions expérimentales observées ; les mêmes précautions que pour l'aluminium ont été prises en ce qui concerne les traitements de trempe et de réchauffage.

Tableau XXII

- $525°C < \theta_M < 570°C$
- $80°C < \theta_R < 470°C$
- temps de maintien à θ_M : 1/2 h à 2 h
- temps de maintien à θ_R : 10 mn à 4 h
- temps de séjour entre la trempe et le réchauffage : 1 h à 2 h
- vitesse de trempe $\geqslant$ 2500°C/sec
- vitesse de réchauffage : 15°C/mn à 300°C/mn

V - 3 - Résultats obtenus

V - 3 - 1 - Influence de la quantité de lacunes en excès à θ_R

Comme dans le cas de l'aluminium, la quantité de lacunes en excès à la température θ_R dépend non seulement de θ_M mais aussi de $\Delta\theta = \theta_M - \theta_R$ (figures 64 et 65).

Il faut cependant noter que la quantité de lacunes existant à une θ_M donnée est supérieure dans le cas de l'alliage A-U4 (cf. III-2-1). Les résultats obtenus sur A-U4 sont indiqués sur le tableau XXIII où l'on a mis en parallèle les valeurs obtenues sur l'aluminium :

Tableau XXIV

θ_M °C	Durée de séjour à 20°C avant réchauffage	θ_R °C	$\Delta\theta$ °C	Durée de séjour à θ_R	Vitesse de réchauffage °C/mn	Nombre de figures thermiques par cm^2	Volume moyen d'une figure thermique μ^3	Nombre calculé de lacunes en excès à θ_R par cm^3 d'après fig.2	Nombre de lacunes éliminées par cm^2 de surface
570	1 h	450	120	1/2 h	300°	$5,3 \times 10^6$ $7,8 \times 10^6$	$0,03\ \mu^3$ $0,12\ \mu^3$	$5,4 \times 10^{19}$	1×10^{16} $5,6 \times 10^{16}$
570	2 h	400	170	1 h	300°	$0,9 \times 10^6$ $1,7 \times 10^6$	$0,03\ \mu^3$ $0,12\ \mu^3$	$6,6 \times 10^{19}$	$0,2 \times 10^{16}$ 1×10^{16}
570	1 h	200	370	1 h	300°	pas F.T.	—	$7,5 \times 10^{19}$	—
550	1 h	400	150	1/2 h	300°	$4,1 \times 10^6$ 6×10^6	$0,03\ \mu^3$ $0,12\ \mu^3$	$5,2 \times 10^{19}$	$0,8 \times 10^{16}$ $4,3 \times 10^{16}$
540	1 h	470	170	15 mn	300°	$1,3 \times 10^6$ $1,5 \times 10^6$	$0,03\ \mu^3$ $0,12\ \mu^3$	3×10^{19}	$0,2 \times 10^{16}$ 1×10^{16}
540	2 h	440	100	15 mn	300°	$1,4 \times 10^6$ $1,8 \times 10^6$	$0,03\ \mu^3$ $0,12\ \mu^3$	$3,2 \times 10^{19}$	$0,3 \times 10^{16}$ $1,2 \times 10^{16}$
540	1 h	400	140	1/2 h	300	$2,9 \times 10^6$ $6,4 \times 10^6$	$0,03\ \mu^3$ $0,12\ \mu^3$	$4,4 \times 10^{19}$	$0,5 \times 10^{16}$ $4,6 \times 10^{16}$
540	1 h	300	240	1/2 h	300	Pas F.T.	—	$5,4 \times 10^{19}$	—
540	1 h	80	460	4 h	300	Pas F.T.	—	$5,5 \times 10^{19}$	—

Tableau XXIII

	θ_M °C	θ_R °C	θ	Nombre de figures thermiques par cm^2	Volume moyen d'une figure en μ^3	Nombre calculé de lacunes en excès à θ_R par cm^3
A-U4	570	400	170	1 à $1,7.10^6$	0,03 à 0,12	$6,6.10^{19}$
	550	400	150	4 à 6.10^6	0,03 à 0,12	$5,2.10^{19}$
A1	580	400	180	16 à 18.10^6	1,6	2.10^{19}
	550	400	150	11 à 13.10^6	1,8	$1,4.10^{19}$

On voit donc que, après un traitement analogue, le nombre de figures thermiques est nettement moins élevé dans le cas de l'alliage A-U4, contrairement à ce qu'on pourrait attendre du nombre calculé de lacunes disponibles pour l'alliage. De plus, les figures étant de plus petites dimensions, le nombre de lacunes éliminées sous forme de figures thermiques par cm^2 de surface sur l'alliage est certainement beaucoup plus faible.

On remarque également (tableau XXIV) que le nombre de figures thermiques, pour un $\Delta\theta$ donné, dépend de θ_M : ce nombre est d'autant plus important que θ_M est plus élevé.

V - 3 - 2 - Influence de la vitesse de réchauffage

V- 3 - 2 - 1 - Cas des traitements à vitesse de réchauffage de l'ordre de 300°C par minute

Les résultats obtenus sur des échantillons oxydés thermiquement sont rassemblés dans le tableau XXIV. Nous avons observé les faits suivants :

V - 3 - 2 - 1 - 1 - Pour θ_M compris entre 540°C et 570°C, et pour $\theta_R \geqslant 400$°C

- La dimension des figures thermiques apparaissant au cours du réchauffage est toujours très faible : elle ne dépend ni de θ_M dans la gamme envisagée de températures, ni de $\Delta\theta$, si $\Delta\theta$ est

compris entre 100 et 170°C. L'alliage A-U4 se distingue donc nettement de l'aluminium raffiné,

- La densité des figures est assez peu affectée par θ_M ou $\Delta\theta$ dans les intervalles considérés : elle est comprise entre 1 et 8.10^6 figures par cm^2. La densité est donc toujours inférieure à celle constatée dans le cas de l'aluminium raffiné.
- La forme des figures est à tendance géométrique, mais à contours très arrondis comme sur l'aluminium (figure 66).
- La répartition des figures n'est pas quelconque :
  - il n'y a aucun liséré appauvri à l'aplomb des joints (figure 67) et des sous-joints,
  - les sous-joints ne sont jamais marqués par une accumulation de figures thermiques ni par des figures thermiques de plus grandes dimensions. Cette observation met en évidence une différence de comportement de l'alliage A-U4 par rapport à celui de l'aluminium,
  - à l'aplomb des bandes de glissement, on constate l'absence de figures thermiques (figures 67 et 68) ce qui permet à nouveau de différencier nettement l'alliage A-U4 de l'aluminium. Etant donné l'impossibilité de percevoir les lignes de glissement à la surface des cristaux recouverts d'une couche d'oxyde, le liséré des bandes privées de figures nous a conduit à conclure à la correspondance entre les bandes de glissement et celles privées de figures. Il est bien entendu que l'on pourrait également penser que les figures sont plus nombreuses à l'aplomb des bandes de glissement. Cependant, des aspects tels que celui de la figure 48 sont en faveur de la première hypothèse,
  - dans les zones balayées par les joints migrant pendant le traitement à la température θ_M, on trouve comme pour l'aluminium, un plus grand nombre de figures thermiques par cm^2 (figure 68),

- certains cristaux présentent un nombre de figures thermiques assez faible (figure 69). Ce comportement est lié vraisemblablement à l'épaisseur de la couche d'oxyde thermique qui peut être affectée par l'orientation du cristal sous-jacent,
- la formation de précipités au niveau des joints de grains ou à l'intérieur des cristaux au cours du réchauffage à θ_R n'a pas d'influence sur la distribution des figures thermiques (figure 67).

V - 3 - 2 - 1 - 2 - Pour θ_M compris entre 540°C et 570°C, et pour $\theta_R \leqslant 300°C$

Pour θ_R comprise entre 80 et 300°C, on ne perçoit aucune figure thermique, dans les mêmes conditions de réchauffage (80° - 300°C) l'aluminium raffiné en présente.

V - 3 - 2 - 2 - Cas des traitements avec vitesse de réchauffage de l'ordre de 15°C/minute

Au cours du réchauffage après trempe depuis θ_M = 540°C, nous avons observé pour une vitesse de réchauffage de 15°C/mn, (grâce à une platine chauffante), la formation et le développement des figures thermiques.

Nous avons constaté les faits suivants :

- lorsque θ_R atteint 230 à 240°C, on observe la formation de petites figures thermiques dans des zones isolées de certains cristaux (figure 70a), ce fait constitue une différence très remarquable entre l'alliage A-U4 et l'aluminium raffiné en ce qui concerne la température de début de perception des figures thermiques, soit 230° et 80°C respectivement,
- à la température θ_R = 340 à 350°C on observe, dans tous les cristaux, un accroissement de la taille des figures thermiques, sauf à l'aplomb des bandes de glissement qui sont visibles grâce à des lisérés privés de figures (figure70b), cette observation met à nouveau en évidence la différence de comportement

de l'alliage A-U4 par rapport à l'aluminium (cf. § V-3-2-1-1-1) (à la réserve faite ci-dessus),

- à θ_R = 400°C, la densité des figures thermiques est de l'ordre de 1,2 à 2,4.10^6 par cm^2 (figure70c), donc toujours inférieure à celle constatée sur l'aluminium à la même température.

Il faut cependant remarquer, comme dans le cas de l'aluminium, que la vitesse de réchauffage (V_r comprise entre 300°C/mn et 15°C/mn), ne modifie pas les phénomènes observés en ce qui concerne la taille, la densité et la répartition des figures thermiques à la surface des cristaux.

V - 3 - 3 - Influence de la durée du séjour à θ_R

V - 3 - 3 - 1 - Pour des vitesses de réchauffage $\geqslant$ 300°C par minute

La durée de séjour à θ_R = 400°C pour des temps compris entre 15 minutes et 1 heure n'a pas une influence prépondérante sur la taille et le nombre des figures thermiques. Le tableau XXIV rassemble les résultats obtenus. On constate :

- lorsque θ_R est compris entre 400 et 470°C et pour θ_M = 540 à 570°C, la variation de la dimension et de la densité des figures thermiques est peu appréciable si le temps de séjour varie de 15 mn à 1 heure,
- quand θ_R est $\leqslant$ 300°C, on ne perçoit aucune figure thermique même si le temps de séjour à θ_R est prolongé, du moins jusqu'à 4 heures.

V - 3 - 3 - 2 - Pour une vitesse de réchauffage de l'ordre de 15°C par minute (pour θ_M =540°C)

Une montée lente en température jusqu'à θ_R = 400°C suivie d'un séjour isotherme à cette température pendant 1/2 heure permet d'observer un accroissement de la taille des figures thermiques

Tableau XXV

	θ_M °C	Durée de séjour à 20°C avant réchauffage	θ_R °C	$\Delta\theta$ °C	Durée de séjour à θ_R	Vitesse de réchauffage °C/mn	Nombre de figures thermiques par cm²	Volume moyen d'une figure thermique μ^3	Nombre calculé de lacunes en excès à θ_R par cm³ d'après fig.2	Nombre de lacunes éliminées par cm² de surface
OXYDE ANODIQUE	540	1 h	450	90	15 mn	300	$2,3 \times 10^6$ 3×10^6	$0,03\ \mu^3$ $0,12\ \mu^3$	$3,6 \times 10^{19}$	$0,5 \times 10^{16}$ $2,1 \times 10^{16}$
	540	1 h	400	140	1/2 h	300	$7,3 \times 10^6$ 8×10^6	$0,03\ \mu^3$ $0,12\ \mu^3$	$4,4 \times 10^{19}$	$1,4 \times 10^{16}$ $5,7 \times 10^{16}$
	540	1 h	300	240	45 mn	300	Pas F.T.	—	$5,4 \times 10^{19}$	—
	540	1 h	200	340	2 h	300	Pas F.T.	—	$5,5 \times 10^{19}$	—
OXYDE THERMIQUE	540	2 h	400	100	15 mn	300	$1,4 \times 10^6$ $1,8 \times 10^6$	$0,03\ \mu^3$ $0,12\ \mu^3$	$3,2 \times 10^{19}$	$0,3 \times 10^{16}$ $1,2 \times 10^{16}$
	540	1 h	400	140	1/2 h	300	$2,9 \times 10^6$ $6,4 \times 10^6$	$0,03\ \mu^3$ $0,12\ \mu^3$	$4,4 \times 10^{19}$	$0,5 \times 10^{16}$ $4,6 \times 10^{16}$
	540	1 h	300	240	1/2 h	300	Pas F.T.	—	$5,4 \times 10^{19}$	—

lorsque le temps de maintien à θ_R augmente (comparer les figures 71 et 72).

L'allure du phénomène dans l'alliage A-U4 est analogue à celle observée sur l'aluminium raffiné. Il faut cependant observer qu'il existe certaines différences remarquables :

- la densité des figures thermiques est plus faible sur l'alliage A-U4 : 0,3 à 1.10^6 figures.cm^{-2}, au lieu de $1,4.10^7$ figures.cm^{-2} sur l'aluminium,
- la température de début de perception des figures thermiques est plus élevée dans le cas de l'alliage : 260°C pour A-U4, au lieu de 80°C pour l'aluminium raffiné.

V - 3 - 4 - Influence de la durée du séjour à 20°C avant le réchauffage à θ_R

Pour des temps compris entre 1 h et 2 h, on n'a observé aucune influence de la durée du séjour à 20°C entre la trempe et le réchauffage sur la densité et la taille des figures thermiques.

V - 3 - 5 - Influence de la nature de la couche d'oxyde

Pour contrôler l'influence éventuelle de l'oxyde superficiel sur la formation des figures thermiques, nous avons utilisé des couches d'oxyde, soit thermique, soit anodique. Le tableau XXV rassemble les résultats obtenus lorsque θ_M = 540°C :

a) Cas de θ_R = 400 à 450°C

- la densité des figures thermiques trouvée avec l'oxyde anodique est légèrement supérieure à celle obtenue avec l'oxyde thermique : 3 à 8.10^6 figures .cm^{-2} au lieu de 1,5 à $6,5.10^6$ figures.cm^{-2} avec l'oxyde thermique,
- la dimension et la forme des figures thermiques ne sont pas affectés :
  - à l'aplomb des joints de grains, on observe avec l'oxyde anodique la présence d'un liséré privé de figures thermiques,

phénomène qui n'a pu être constaté avec l'oxyde thermique (figure 73),

- quelle que soit l'origine de la couche d'oxyde, l'absence des figures thermiques au niveau des bandes de glissement et à l'aplomb des sous-joints a été toujours observée.

b) Cas de θ_R = 200 à 300°C

Quelle que soit la nature de la couche d'oxyde thermique ou anodique, et pour des durées de séjour à θ_R comprises entre 1/2 heure et 2 heures, l'apparition des figures thermiques n'a pu être observée, ce qui distingue nettement l'alliage A-U4 et l'aluminium raffiné.

Figure 64 - Nombre de lacunes en excès par cm^3 dans l'alliage A-U4 en fonction de $\Delta\theta = \theta_M - \theta_R$ pour diverses températures de θ_M (calculée avec la formule de LOMER où c est la concentration totale de cuivre présent dans l'alliage).

Figure 65 - Nombre de lacunes en excès par cm^3 dans l'alliage A-U4 en fonction de $\Delta\theta = \theta_M - \theta_R$ pour diverses températures de θ_M (calculée avec la formule de LOMER où c est la concentration du cuivre effectivement en solution à chaque température).

Figure 66 - G x 1000 - Alliage A-U4 (échantillon de 2 mm d'épaisseur) - Figures thermiques obtenues par réchauffage a θ_R = 400 °C.;
θ_M = 540 °C, 5 h; θ_R = 400 °C ½ h; V_r = 300 °C/sec
On observe un liséré appauvri en figures thermiques.

Figure 67 - Fond noir - G x 150 - Absence de figures thermiques vraisemblablement a l'aplomb des bandes de glissement sur un alliage AQU4 tratité comme celui de la figure 66
θ_M = 540 °C, 5 h; θ_R = 400 °C, ½ h; V_r = 300 °C/sec.
J : joints de grains.

Figure 68 - G x 150 - Alliage A-U4 (échantillon de 2 mm d'épaisseur) - Variation du nombre de la densité de figures thermiques sur les zones balayées par des joints migrants.
θ_M = 570 °C, 2 h; θ_R = 400 °C, ½ h; V_r = 300 °C/mn.
J : joint de grains de l'état initial
J': joint de grains position actuelle.

Figure 69 - Fond noir - G x 150 - Alliage A-U4 (échantillon de 2 mm d'épaisseur) - Influence de l'orientation du cristal sur la densité de figures thermiques.
θ_M = 550 °C, 1 h ½ ; θ_R = 400 °C, ½ h; V_r = 300 °C/mn
J : joint de grains.

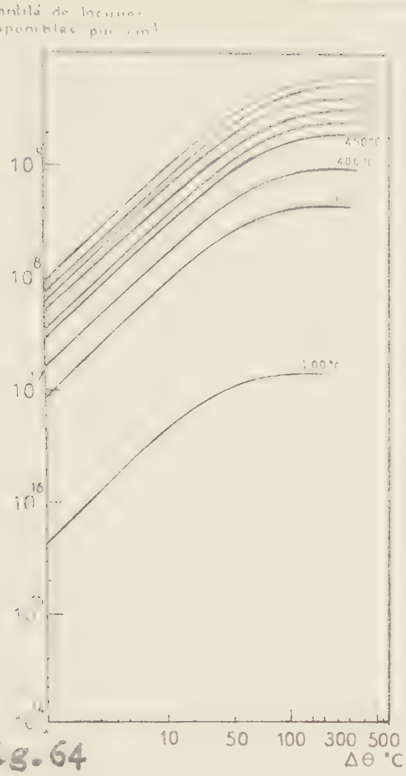


Fig.64

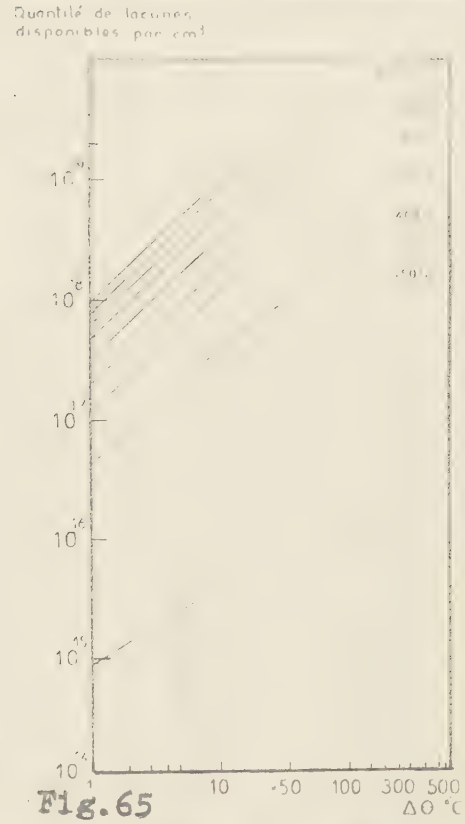


Fig.65

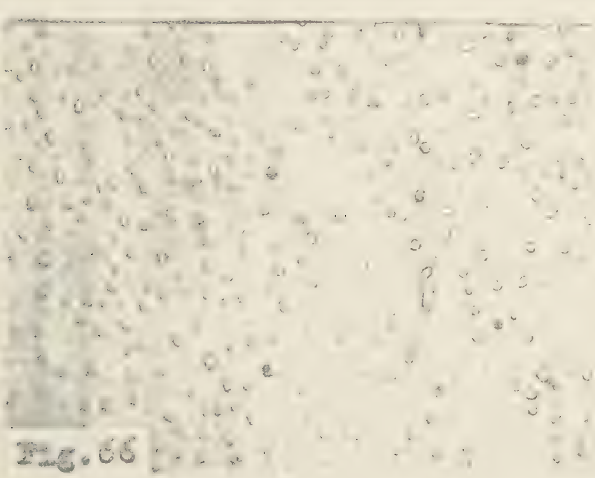


Fig.66

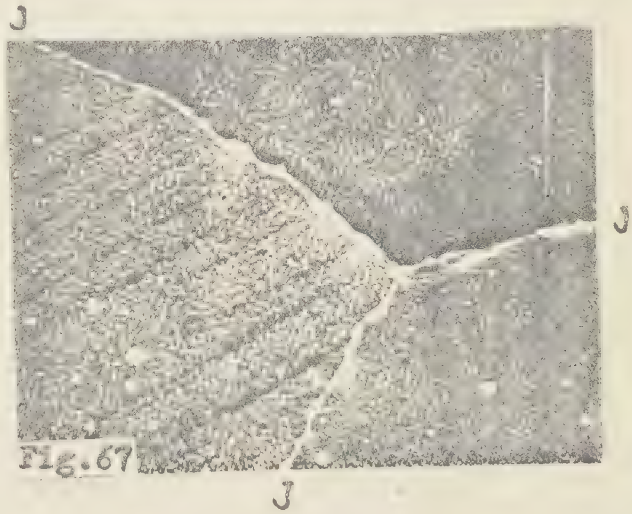


Fig.67

Fig.68

Fig.69

Figure 70 - Alliage A-U4 réchauffé à 15 °C/minute après trempe à 0 °C depuis 540 °C. Aspects successifs à diverses θ_R croissants.

a : θ_R : 240 °C - Début de perception des figures - G x 75

b : θ_R : 340 °C - G x 75

c : θ_R : 420 °C - G x 75.

Figure 71 - Fond noir - G x 75 - Alliage A-U4 (échantillon de 2 mm d'épaisseur examiné à la platine chauffante) - Aspect observé à :

θ_R = 400 °C

V_r = 15 °C/mn

θ_M = 540 °C

(comparer à la figure 72)

Figure 72 - Fond noir - G x 75 - Même échantillon que celui de la figure 71 après un temps de maintien de 1/2 h à 400 °C

θ_M = 540 °C

V_r = 15 °C/mn.

Figure 73 - Fond noir - G x 150

Alliage A-U4 (échantillon de 2 mm d'épaisseur), oxydé anodiquement.

Liséré privé de figures thermiques a l'aplomb des joints de grains J

θ_M : 540 °C, 1 h; θ_R : 450 °C, ½ h ; V_r : 300 °C/mn.

θ_R : [illegible] °C θ_R : [illegible] °C θ_R : [illegible] °C

[illegible] 70 - [illegible] A-[illegible] [illegible] [illegible] après [illegible] à [illegible] °C [illegible] °C. [illegible] à [illegible] θ_R [illegible].

Fig.71

Fig.72

Fig.73

CHAPITRE VI

VI - CONCLUSIONS

Ce travail a porté essentiellement sur l'étude de la formation des figures thermiques en comparant le comportement des aluminiums raffinés et d'un alliage binaire Al-Cu. Cette comparaison nous a permis de mettre en évidence l'influence d'un élément d'alliage tel que le cuivre sur l'élimination de lacunes sous forme de figures thermiques.

Les traitements adoptés pour chaque matériau nous ont permis de déterminer le rôle de certains facteurs susceptibles de modifier la formation des figures thermiques, aussi bien au cours de traitements de trempe étagée que lors de traitements de réchauffage après trempe.

VI- 1 - Traitement de trempe étagée

VI - 1 - 1 - Cas de l'aluminium raffiné

Dans ce cas nous avons pu montrer les points suivants :

VI - 1 - 1 - 1 - Le nombre de figures thermiques formées par unité de surface (qui varie de 10^6 à 10^7 figures par cm^2) dépend de plusieurs facteurs tels que :

- la température θ_M,
- la valeur $\Delta\theta = \theta_M - \theta_m$,
- la vitesse de refroidissement,
- l'épaisseur de l'échantillon,
- la pureté du métal, et
- la structure de la couche d'oxyde, laquelle peut être amorphe ou cristalline.

D'une façon générale on peut dire que les figures sont d'autant plus nombreuses que θ_M, $\Delta\theta$ et la vitesse de refroidissement sont plus importants, mais il est nécessaire que θ_M soit

supérieure à 525°C si l'on veut observer des figures thermiques sur un échantillon oxydé thermiquement.
Si la vitesse de refroidissement est supérieure à 2500°C/sec il n'est cependant plus possible de constater la présence des figures thermiques lorsque θ_m est inférieure à 50°C environ.
Si θ_m est > 100°C les figures sont d'autant plus nombreuses, pour un $\Delta\theta$ donné que la vitesse de refroidissement est plus importante.
Au cas ou θ_M est inférieure à 525°C, il est cependant possible de former des figures, à condition que la surface des échantillons soit oxydée anodiquement avant le traitement à θ_M. Bien entendu, si θ_M devient très basse, de l'ordre de 300°C ou moins, la quantité de lacunes disponibles étant faible, les figures thermiques ne peuvent être perçues au microscope optique.

VI - 1 - 1 - 2 - Le volume des figures thermiques peut varier entre 0,006 et 180 μ^3, $\Delta\theta$ et la vitesse de refroidissement sont les facteurs essentiels qui modifient la taille des figures. Celles-ci sont d'autant plus petites que V_R est plus important (tout en demeurant inférieure à 1000°C/sec) ; elles sont d'autant plus fines pour une vitesse de refroidissement donnée que $\Delta\theta$ est plus important.

VI - 1 - 1 - 3 - La répartition des figures n'est pas quelconque : à l'aplomb des joints et des sous-joints on constate toujours un liséré exempt de figures, ce qui montre que ces frontières sont des lieux d'élection privilégiés pour les lacunes. On constate également que dans les zones balayées par les joints migrant au cours du traitement à θ_M, le nombre de figures par cm^2 est plus important.

VI - 1 - 1 - 4 - La présence de l'impureté fer a une influence assez nette sur la densité et sur la dimension des figures thermiques : les

figures sont d'autant plus grosses et moins nombreuses que l'aluminium est plus impur, lorsque le traitement est effectué dans une zone de température correspondant à celle de précipitation du fer sur les dislocations. Cet effet ne devient appréciable que si la précipitation précède l'apparition des figures thermiques à la surface.

VI - 1 - 1 - 5 - La structure de la couche d'oxyde peut avoir un effet très sensible sur la formation des figures thermiques ; pour avoir une couche d'oxyde thermique d'épaisseur comparable sur tous les cristaux $\theta_M > 525°C$, il faut au moins 1/2 heure de maintien à θ_M. L'utilisation de l'oxyde anodique permet des temps de séjour à θ_M réduits à 5 minutes, et les résultats obtenus sont alors comparables à ceux donnés par l'oxyde thermique résultant d'une oxydation assez prolongée.
Nous avons signalé par ailleurs que seul l'oxyde anodique permet d'observer des figures thermiques si θ_M est compris entre 525°C et 400°C.

VI - 1 - 1 - 6 - L'épaisseur de l'échantillon a une influence remarquable sur la densité des figures thermiques au moins dans la gamme des échantillons assez minces : quand l'épaisseur est de 2/10 mm le nombre de figures thermiques est environ 10 fois plus faible que sur les échantillons de 2 mm d'épaisseur, et sur des éprouvettes de 1/10 mm d'épaisseur traitées dans les mêmes conditions, nous n'avons pas observé de figures thermiques au microscope optique. Il y a donc une épaisseur minimale (de l'ordre de 1/10 mm) qui est requise si l'on veut pouvoir observer des figures thermiques après un traitement de trempe étagée.

VI - 1 - 2 - Cas de l'alliage A-U4

VI - 1 - 2 - 1 - Le nombre de figures thermiques observé par cm^2 de surface,

inférieur à la valeur trouvée sur l'aluminium raffiné, est compris entre 10^5 et 10^6 figures/cm^2. Il dépend principalement des facteurs suivants :

- les températures maximales θ_M et minimales θ_m,
- la vitesse de refroidissement,
- l'épaisseur de l'échantillon,
- le temps de séjour à θ_M et θ_m,
- la nature de la couche d'oxyde.

Comme pour l'aluminium, la densité des figures thermiques est plus élevée si θ_M, $\Delta\theta$ et la vitesse de refroidissement sont plus importants. Si $\theta_M > 525°C$ et si V_R est faible, il faut au minimum $\Delta\theta = 100°C$ pour observer des figures thermiques. Ce fait, permet de différencier le comportement de l'alliage A-U4 de celui de l'aluminium pour lequel $\Delta\theta$ minimum est de l'ordre de 150°C.
Si la vitesse de refroidissement est comprise entre 200° et 1000°C/sec, la densité de figures thermiques augmente avec V_R à condition que θ_m soit supérieure à 200°C.
Si θ_m est inférieure à 200°C et si V_R est important, il n'est plus possible de constater la présence des figures thermiques, ce qui distingue l'alliage A-U4 de l'aluminium raffiné puisque θ_m minimale pour l'aluminium est de l'ordre de 50°C.
Dans le cas où θ_M est compris entre 400 et 525°C, la formation des figures thermiques est possible, à condition que l'échantillon soit <u>oxydé anodiquement</u> avant le traitement à θ_M et que θ_m soit supérieure à 200°C, si V_R est importante.

VI - 1 - 2 - 2 - <u>Le volume des figures thermiques</u> peut varier entre 0,03 et 11 μ^3 ; les facteurs ayant une influence sur le volume des figures sont : θ_M, $\Delta\theta$ et la vitesse de refroidissement.
Si θ_M est supérieure à 525°C, et pour de faibles vitesses de refroidissement, le volume est fonction de $\Delta\theta$: plus $\Delta\theta$ est élevée, plus les figures sont petites. Pour un $\Delta\theta$ donné, si

la vitesse de refroidissement est élevée (de l'ordre de 1000°C/sec), le volume est fonction de la vitesse de refroidissement : plus V_R est élevée, plus les figures sont petites.

VI - 1 - 2 - 3 - La répartition des figures thermiques n'est pas quelconque et l'on observe toujours des lisérés appauvris à l'aplomb des joints de grains comme dans le cas de l'aluminium. Dans les zones balayées par les joints migrant au cours du traitement à θ_M on n'a pas observé d'anomalies en ce qui concerne la densité des figures thermiques.

VI - 1 - 2 - 4 - La structure de la couche d'oxyde a également un effet très sensible : si la couche d'oxyde est amorphe, il n'y a pas de figures thermiques perceptibles. Si la couche d'oxyde est cristalline, que son origine soit thermique ou anodique, la formation des figures thermiques devient possible à condition que θ_M et $\Delta\theta$ soient suffisamment importantes.
Si θ_M est inférieure à 525°C, l'oxyde thermique ne permet pas de percevoir des figures thermiques, quel que soit $\Delta\theta$. Par contre si la couche d'oxyde est anodique, la formation des figures thermiques est possible à condition que θ_M soit de l'ordre de 450°C et que θ_m soit supérieure à 200°C.

VI - 1 - 2 - 5 - L'épaisseur de l'échantillon joue aussi un rôle important puisque des échantillons de 1/10 mm d'épaisseur n'ont pas montré de figures thermiques. La présence du cuivre ne semble donc pas modifier l'épaisseur minimale requise pour permettre l'observation des figures.

VI - 2 - Traitements de trempe suivis de réchauffage

VI - 2 - 1 - Cas de l'aluminium

Les examens au microscope optique ont montré les faits essentiels

suivants :

VI - 2 - 1 - 1 - Le nombre de figures thermiques formées par unité de surface (compris entre 10^6 et 10^7 figures.cm ^{2}) dépend de nombreux facteurs tels que :

- la température de trempe θ_M
- la température de réchauffage θ_R
- la valeur $\Delta\theta = \theta_M - \theta_R$
- la vitesse de réchauffage
- la structure de la couche d'oxyde
- l'épaisseur de l'échantillon.

- Dans le cas où $\theta_M > 525°C$, la densité des figures thermiques est d'autant plus importante que θ_M et $\Delta\theta$ sont plus élevés, mais à condition que θ_R soit supérieure à 100°C tout en étant bien inférieure à θ_M.
Si θ_R est voisine de θ_M, la vitesse de réchauffage doit être assez faible si l'on veut pouvoir observer des figures thermiques.

Si $\theta_R < 50°C$, il n'y a pas formation de figures thermiques.

- Si θ_M est compris entre 400 et 525°C, il est nécessaire que la surface de l'échantillon soit oxydée anodiquement après la trempe si l'on veut observer des figures thermiques au cours du réchauffage.

VI - 2 - 1 - 2 - Le volume des figures thermiques peut varier entre 0,01 et μ^3. Pour une température θ_M donnée, la température θ_R et le temps de maintien à θ_R sont les facteurs essentiels qui modifient la taille des figures. Celles-ci sont d'autant plus petites que θ_R est plus faible.
Si la vitesse de réchauffage est de l'ordre de 15°C/minute, on peut observer la présence des figures thermiques à partir d'une température minimale de 80°C.

Si θ_R est compris entre 100 et 270°C, la dimension et la densité des figures thermiques observables au microscope optique augmente avec la durée du séjour à θ_R.
Par contre, si $\theta_R \geqslant 400°C$, l'influence du temps de séjour à θ_R (entre 15 minutes et 2 heures) est presque nulle.

VI - 2 - 1 - 3 - La répartition des figures n'est pas quelconque : à l'aplomb des joints et des sous-joints, il n'y a pas de liséré exempt de figures. Par contre, on constate au niveau des sous-joints et des bandes de glissement produites pas la tremps, un plus grand nombre de figures thermiques. Dans les zones balayées par les joints migrant au cours du traitement à θ_M, on trouve jusqu'à 10^9 figures thermiques par cm^2 environ.

VI - 2 - 1 - 4 - La durée du séjour à température ambiante avant le réchauffage
Le temps de séjour à 20°C avant le réchauffage, compris entre 1 minute et 14 mois, n'a pas d'influence sur la dimension ni sur la densité des figures thermiques formées au cours d'un réchauffage ultérieur.

VI - 2 - 1 - 5 - La structure de la couche d'oxyde, comme dans le cas des traitements de trempe étagée, a un effet très net sur la formation des figures thermiques. Si la couche d'oxyde est d'origine thermique, il faut que la température de formation de l'oxyde (θ_M) soit supérieure à 525°C et que le temps de maintien à cette température soit égal ou supérieur à 1/2 heure si l'on veut percevoir des figures thermiques.
Si $\theta_M < 525°C$, la formation des figures thermiques n'est possible que si l'échantillon est oxydé anodiquement avant le réchauffage.

VI - 2 - 1 - 6 - L'épaisseur de l'échantillon, dans la gamme des épaisseurs assez faibles, a une influence[10] remarquable sur la densité et sur la dimension des figures thermiques formées pendant le réchauffage après trempe. Si l'épaisseur de l'échantillon est de 3/100 mm environ, on observe 5 fois moins de figures thermiques par cm^2 que dans l'échantillon de 2 mm d'épaisseur, traité dans les mêmes conditions.

VI - 2 - 2 - Cas de l'alliage A-U4

VI - 2 - 2 - 1 - Le nombre de figures thermiques : si $\theta_M \geqslant 525°C$ et $\theta_R \geqslant 400°C$, la densité des figures thermiques varie entre 1 et 3.10^6 figures par cm^2.

Pour $\theta_M \geqslant 540°C$, les facteurs suivants sont importants :

- la température θ_R,
- la valeur $\Delta\theta = \theta_M - \theta_R$,
- le temps de séjour à θ_R,
- la vitesse de réchauffage V_r,
- la structure de la couche d'oxyde,
- l'épaisseur de l'échantillon.

Si $\theta_R \geqslant 400°C$, le nombre des figures est d'autant plus grand que θ_R est plus élevé (tout en étant suffisamment inférieure à θ_M). Par contre, si $\theta_R \leqslant 240°C$, on n'a pas observé la formation de figures thermiques visibles au microscope optique si le temps de maintien à θ_R est de quelques minutes.

Pour une température θ_M donnée, la densité des figures thermiques est plus élevée si θ est important, à condition que θ_M soit $> 240°C$. La vitesse de réchauffage n'a que peu d'influence sur le nombre des figures visibles au microscope optique (pour $15°C < V_r < 300°C$). Si $\Delta\theta$ est faible ou nul il est nécessaire que V_r soit faible si l'on veut pouvoir observer des figures thermiques.

VI - 2 - 2 - 2 - Le volume des figures thermiques peut varier de 0 03 à 0,12 μ^3. Pour un traitement donné, les figures sont d'autant plus petites que θ_R est plus basse ou que le temps de maintien à θ_R est plus court.

Avec V_r = 15°C/mn, le début de perception des figures est à 240°C environ et le volume des figures thermiques augmente si θ_R augmente jusqu'à 400°C.

Le volume des figures augmente avec le temps de maintien à condition que θ_R soit compris entre 240°C et 400°C. Si θ_R est $>$ 400°C, des durées de 5 minutes suffisent pour que les figures aient atteint leur volume maximum.

VI - 2 - 2 - 3 - La répartition des figures n'est pas quelconque : avec l'oxyde thermique, il n'y a pas de liséré appauvri à l'aplomb des joints ou des sous-joints. On constate également des régions privées de figures à l'aplomb des bandes de glissement. L'accumulation des figures thermiques au niveau des sous-joints (ou la présence de figures de plus grandes dimensions à l'aplomb des sous-joints) que nous avions constatée sur l'Al n'a jamais été observée sur l'alliage A-U4.

Dans les zones balayées par les joints migrant au cours du traitement à θ_M, on trouve une densité de figures plus forte, bien que moins élevée que celle observée dans le cas des zones de migrations sur l'Al.

VI - 2 - 2 - 4 - La durée du séjour à la température ambiante avant le réchauffage, (compris entre 1 et 2 heures) n'a pas affecté la dimension ni la densité des figures thermiques obtenues par un réchauffage ultérieur.

VI - 2 - 2 - 5 - La structure de la couche d'oxyde est un facteur important : on a vu que si $\theta_M < 525°C$, seul l'oxyde anodique permet de percevoir des figures. Par ailleurs, si $\theta_M > 525°C$, l'oxyde anodique conduit à une densité de figures légèrement supérieure à celle obtenue avec l'oxyde thermique.
Si l'oxyde thermique ne permet pas de voir un liséré privé de figures à l'aplomb des joints et des sous-joints, ce phénomène est très bien perçu avec l'oxyde anodique.
Par contre, l'absence des figures thermiques au niveau des bandes de glissement a été toujours observée, que l'oxyde soit thermique ou anodique.

VI - 2 - 2 - 6 - L'épaisseur de l'échantillon, dans le cas des échantillons assez minces, a un effet important sur la dimension et sur la densité des figures thermiques : plus l'épaisseur est faible, moins la densité est grande.
Si $e \leqslant 0,1$ mm, il n'est plus possible de constater la présence de figures thermiques au microscope optique.

VI - 3 - Discussion

L'ensemble des résultats obtenus avec l'aluminium et l'alliage A-U4 permettant les remarques suivantes :

VI - 3 - 1 - Cas des trempes étagées

- La valeur minimale de $\Delta\theta$ permettant d'observer des figures thermiques est inférieure dans le cas de l'alliage A-U4 : $\Delta\theta = 100°C$ au lieu de 150°C pour Al lorsque $\theta_M > 525°C$ et $V_R = 2$ à 5°C/sec. Ceci est en accord avec le fait que la concentration en lacunes est plus forte dans le cas de l'alliage.

- La plus faible densité des figures thermiques constatée sur l'alliage A-U4 et la valeur élevée de θ_m nécessaire pour observer

des figures thermiques dans le cas de l'alliage (> 200°C sur A-U4 au lieu de 80°C sur Al) peut s'expliquer par l'existence d'une interaction lacunes-atomes de soluté. Les lacunes sont moins mobiles dans l'alliage A-U4 ce qui limite leur élimination à la surface sous forme de figures thermiques.

VI - 3 - 2 - Cas des réchauffages après trempe

- La durée du séjour à 20°C étant sous influence sur la formation des figures au cours d'un réchauffage ultérieur, il s'ensuit qu'un grand nombre de lacunes gelées par la trempe à basse température demeurent effectivement bloquées à l'intérieur des cristaux (sous forme soit de boucles, soit de vides octoédriques ou d'amas isolés).

- Les températures minimales de réchauffage nécessaires pour éliminer les lacunes gelées sont très différentes dans le cas de l'aluminium (θ_R = 80°C) et dans le cas de l'alliage A-U4 (θ_R = 230°C environ). Cette différence est sans doute en relation avec l'énergie d'interaction lacunes-atomes de cuivre. A l'appui de cette hypothèse, il faut remarquer que la densité des figures thermiques observées sur l'aluminium est toujours plus élevée que celle constatée avec l'alliage A-U4, bien que dans l'alliage il y ait plus de lacunes en excès pour un θ_M et un $\Delta\theta$ donnés.

- Mis à part le cas de l'alliage où nous n'avons pas de preuves formelles que les bandes de glissement seraient mises en évidence par l'absence de figures thermiques, la présence sur l'aluminium d'un plus grand nombre de figures thermiques à l'aplomb des joints, des sous-joints et des bandes de glissement est en faveur de l'hypothèse que les dislocations sont des voies préférentielles pour l'élimination des lacunes vers la surface de l'aluminium et de l'alliage A-U4.

BIBLIOGRAPHIE

(1) WYON G. - MARCHIN J.M. - LACOMBE P., Mém. Scient. Rev. Mét. 53, (1956) 945

(2) WYON G. - MARCHIN J.M. - LACOMBE P., Mém. Scient. Rev. Met. 56, (1959) 549

(3) WYON G. - MARCHIN J.M. - LACOMBE P., Mém. Scient. Rev. Met. 59, (1961) 641

(4) WYON G. - MARCHIN J.M. - LACOMBE P., Mém. Scient. Rev. Mét. 60, (1963) 257

(5) KIMURA H. - KIMURA A.et HASIGUTI R.R., Acta Met., 6 (1962) 607

(6) GRAF R. - C.R. Acad. Sc. Paris 246 (1958) 1544

(7) PANSERI C. - FEDERIGHI T. - Acta Met. 4 (1960) 217

(8) DOHERTY P.E. - DAVIS R.S. - Acta Met. 7 (1959) 118

(9) KASEN M.B. - TAGGART R. - POLONIS D.H. - Phil. Mag., 13 (1966) 453

(10) CALVET J. - RENON C. - Mém. Sc. Rev. Mét., 57 (1960) 345

(11) BRANDON G.G. - NUTTING J. - Brit. J. of Appl. Phys., 10 (1959) 275

(12) KELLY P.M. - NUTTING J. - J. Inst. Met., 37 (1959) 385

(13) SAULNIER A. - MIRAND P. - C.R. Acad. Sc. Paris 246 (1958) 1638

(14) DE SORBO W. - TREAFTIS H.N. - TURNBULL D. - Acta Mét., 6 (1958) 401

(15) LENOIR G. - Recher. Aéronautique, 36 (1953) 35

(16) NICHOLSON R.G. - THOMAS G. - NUTTING J. - J. Appl. Physics, 25 (1958) 27

(17) JACQUET P. - La Technique Moderne, 31 (1939) 561

(18) DIMITROV O. - ALBERT Ph. - Rev. de Mét., 56 (1959) 267

(19) LACOMBE P. - MOUFLAR M. - Métaux, Corrosion, Ind., 340 (1953) 471

(20) HERENGUEL J. - LELONG P. - C.R. Acad. Sc. Paris, 232 (1951) 228

(21) HERENGUEL J. - LELONG P. - Rev. de Mét. 49 (1952) 374

(22) HUMMER M.S. - FOWLE P. - J. Electrochem. Soc. 103 (1956) 482

(23) HASS G. - J. Opt. Soc. Amer., 39 (1949) 532

(24) HERENGUEL J. - Rev. Mét., 46 (1963) 284

(25) HERENGUEL J. - SEGOND R. - Rev. de Mét. 42 (1945) 258

(26) HERENGUEL J. - SEGOND R. - Rev. de Mét. 46 (1949) 377

(27) HERENGUEL J. - LELONG P. - Rev. de Mét. 249 (1957) 1197

(28) HERENGUEL J. - LELONG P. - Mét. Fin. N. 4, (1958) 29

(29) KEHLER F. - Min. and Mét., 16 (1935) 518

(30) EDGAR G.K. - Trans. A.I.M.E., 180 (1949) 225

(31) FINK W.L. - WILLEY L.A. - Metals Technology XIV, Techn. Publ. n.2225 (1947)

(32) BIGOT R. - FAIVRE R. - Rev. de Mét., 53 (1956) 132

(33) BIGOT R. - FAIVRE R. - C.R. Acad. Sc. Paris, 244 (1957) 1639

(34) DI RUSSO E. - Alluminio - Nuova Metallurgia 6 (1966) 271

(35) LOMER M. - Vacancies and point defects in metals and alloys - J. I. M. - Symposium (1967)

(36) SIMMONS R.O. - BALLUFFI R.W. - Phys. Rev. 117 (1960) 62

(37) BIANCHI G. - MALLEJAC D. - JANOT C. - CHAMBIER G. - C.R. ACad. Sc. Paris 267 (1966) 1404

(38) DOHERTY P.E. - Mém. Sc. Rev. Mét., 62 (1965) 197

(39) JASPERE H.R. - DOHERTY P.E. - Phil. Mag. 9 (1964) 635

(40) CABRERA N. - HAMON J. - C.R. Acad. Sc. 224 (1947) 1713

(41) MARMAI A.R. - WYON G. - LEROY M. - C.R. Acad. Sc. Paris, Série C., t. 264 (1967) 552

(42) OUDAR - PAIDASSI - L'oxydation des métaux - Chap. XIII, 363

(43) LEROY M. - Rapport D.R.M.A. (1967)